

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 09102409

PUBLICATION DATE : 15-04-97

APPLICATION DATE : 02-10-95

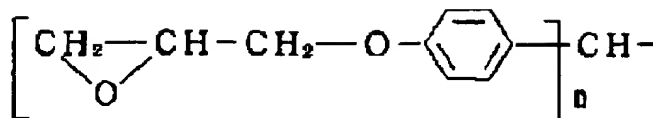
APPLICATION NUMBER : 07255300

APPLICANT : HITACHI POWDERED METALS CO  
LTD;

INVENTOR : MIYAO HIROSHI;

INT.CL. : H01F 1/24 C08K 3/08 C08L 63/00 //  
H02K 1/02

TITLE : RESIN COMPOSITION FOR DUST  
CORE, DUST CORE, REACTOR, AND  
ELECTRIC DEVICE



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a dust core with a high effective permeability and a high magnetic flux density by adding to a metallic magnetic powder covered with an inorganic insulation layer a thermosetting resin composition including an epoxy resin with specific chemical structure of specified weight percentage and by forming and curing it thereafter.

SOLUTION: A metallic magnetic powder of 99.5 to 92.0 in weight percentage of Fe-Al alloy powder such as atomized iron powder covered with an inorganic insulation film is added and mixed with a 5 to 8wt.% thermosetting resin composition including an epoxy resin of 100 to 50 weight part having a heat resistance of more than F kinds as represented by a general formula and an epoxy resin of 0 to 50 weight part having two p-(2,3-epoxypropoxy)phenyl groups, and it is formed under a pressure of 100 to 800Mpa by a powder forming press while heating it at  $\leq 300^\circ\text{C}$  for hardening. Thus, even when it is kept at  $155^\circ\text{C}$  for 5000 hours, mutual insulation among metallic magnetic powder particles can be kept and its specific resistance becomes 0.1 to  $10\Omega\text{cm}$ , thereby suppressing an increase in eddy current loss.

COPYRIGHT: (C)1997,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-102409

(43) 公開日 平成9年(1997)4月15日

(51) Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 F 1/24			H 0 1 F 1/24	
C 0 8 K 3/08			C 0 8 K 3/08	
C 0 8 L 63/00	N J W		C 0 8 L 63/00	N J W
// H 0 2 K 1/02			H 0 2 K 1/02	A

審査請求 未請求 請求項の数30 O L (全 37 頁)

(21) 出願番号 特願平7-255300

(22) 出願日 平成7年(1995)10月2日

(71) 出願人 000005108

株式会社日立製作所

東京都千代田区神田駿河台四丁目6番地

(71) 出願人 000233572

日立粉末冶金株式会社

千葉県松戸市稔台520番地

(72) 発明者 小山 徹

茨城県日立市大みか町七丁目2番1号 株式会社日立製作所電力・電機開発本部内

(72) 発明者 白濱 秀文

茨城県日立市大みか町七丁目2番1号 株式会社日立製作所電力・電機開発本部内

(74) 代理人 弁理士 平木 祐輔

最終頁に続く

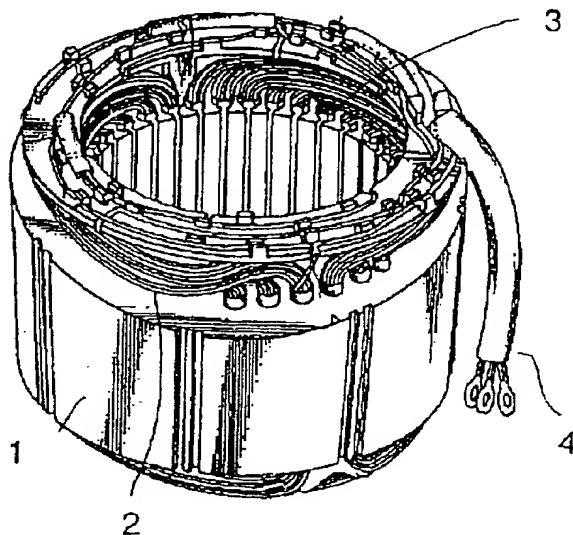
(54) 【発明の名称】 圧粉磁心用樹脂組成物、圧粉磁心、リアクトル及びそれを用いた電気機器

## (57) 【要約】

【課題】 高耐熱性、高周波で高実効透磁率、かつ高磁束密度の圧粉磁心を作製し得る圧粉磁心用樹脂組成物、圧粉磁心、それを用いたコイル、リアクトル、サイリスタバルブ、モータ、トランス等の電気機器を提供することである。

【解決手段】 耐熱性を有する無機絶縁皮膜で被覆した絶縁金属磁性粉末に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより1・00～800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心、及びそれをコアとした電気機器。

【効果】 155℃に5000時間保持しても金属磁性粉末粒子相互の絶縁が維持でき、金属磁性粉末同士の接触による渦電流損失の増大を抑制でき、高い周波数帯域まで透磁率を低下させずに保つことができ、冷却等を簡略化できる。また、圧粉磁心のコアとした電気機器は、通常の珪素銅板を鉄心コアとした電気機器と異なり、打ち抜きを必要としないので、コアの材料の無駄をなくすることができる。

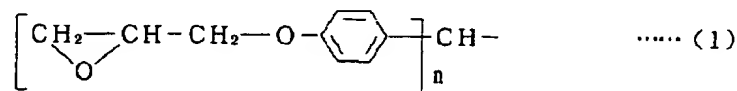


1

2

【特許請求の範囲】

\* シ) フェニル基を 3 個以上含む、下記一般式(1)

【請求項 1】 (A)  $\text{D}-(2,3\text{-エポキシプロポキシ})$  【化 1】式中、 $n$  は 3 以上の整数である。

で表される多官能エポキシ樹脂 100~50 重量部と、

※ び (B) 無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末 99.5~

D-(2,3-エポキシプロポキシ) フェニル基を 2 個

92.0 重量% を含有する圧粉磁心用樹脂組成物。

有する二官能性エポキシ樹脂 0~50 重量部とを少なく

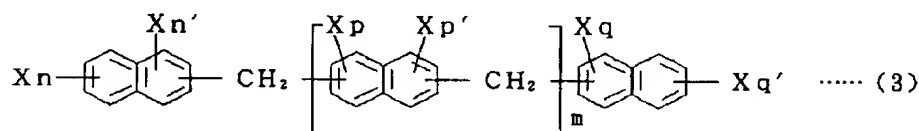
【請求項 2】 (A) 下記一般式(2)、(3) 又は(4)

とも含む熱硬化性樹脂組成物 0.5~8.0 重量%、及※

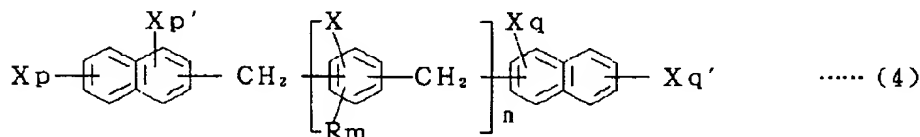
【化 2】

式中、 $X$  は  $-\text{O}-\text{CH}_2-\text{CH}-\text{CH}_2-$  基 (2,3-エポキシプロポキシ基) を示す。 $n, m$  は 1、2 又は 3 である。

【化 3】

式中、 $X$  は  $-\text{O}-\text{CH}_2-\text{CH}-\text{CH}_2-$  基 (2,3-エポキシプロポキシ基) を示す。 $n, n', p, p', q, q'$  は 0、1、2、3 又は 4 である。但し、 $n$  及び  $n'$ 、 $p$  及び  $p'$ 、 $q$  及び  $q'$  の両者が 0 になることはない。 $n$  は 0、1 又は 2 である。

【化 4】

式中、 $X$  は  $-\text{O}-\text{CH}_2-\text{CH}-\text{CH}_2-$  基 (2,3-エポキシプロポキシ基) を示す。 $R$  は炭素数 1~10 のアルキル基を示す。 $m$  は 0、1 又は 2 であり、 $n$  は 1、2 又は 3 である。 $p, p', q, q'$  は 0、1、2、3 又は 4 である。但し、 $p$  及び  $p'$ 、 $q$  及び  $q'$  の両者が 0 になることはない。

で表されるナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂を少なくとも含む熱硬化性樹脂組成物 0.5~8.0 重量%、及び (B) 無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末 99.5~92.0 重量% を含有する圧粉磁心用樹脂組成物。

【請求項 3】 (A) アミノマレイミド 0.5~8.0 重量%、及び (B) 無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末 99.5~92.0 重量% を含有する圧粉磁心用樹脂組成物。

【請求項 4】 (A) アミノマレイミド 0.5~5.0 重量%、(B) エポキシ樹脂 0.5~5.0 重量%、及び (C) 無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末 99.0~90.0 重量% を含有する圧粉磁心用樹脂組成物。

【請求項 5】 (A) ビスマレイミド 100 重量部と、ジアルキルビスフェノール類 50~100 重量部とを少なくとも含む樹脂組成物 0.5~8.0 重量%、及び

50 (B) 無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末 99.5~9

2.0重量%を含有する圧粉磁心用樹脂組成物。

【請求項6】 (A) ビスマレイミド100重量部と、ジアリルビスフェノール類50～100重量部と、多官能性エポキシ樹脂0～100重量部とを少なくとも含む樹脂組成物0.5～8.0重量%、及び(B) 無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末99.5～92.0重量%を含有する圧粉磁心用樹脂組成物。

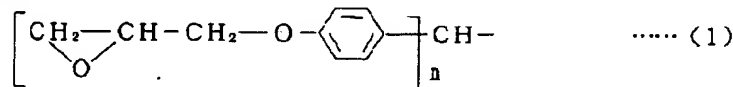
【請求項7】 金属磁性粉末と、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液とを混合し、該金属磁性粉末にP、Mg、B及びFeを必須成分とするガラス状絶縁皮膜を形成した混合体を調製し、該混合体を乾燥させて水分を除去する第1工程と、該乾燥させた混合体99.5～92.0重量%に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を0.5～8.0重量%添加、混合し、粉末成型プレスにより100～800MPaの圧力で固化成型する第2工程と、該固化成型体を300℃以下の温\*

\*度で加熱硬化する第3工程とを備えたことを特徴とする圧粉磁心の製造方法。

【請求項8】 金属磁性粉末に絶縁皮膜を形成した後、バインダを混合し、加圧成型及び加熱硬化してなる圧粉磁心において、該絶縁皮膜が燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して得られたP、Mg、B及びFeを必須成分とする無機絶縁皮膜であり、該バインダがF種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物であり、該加圧成型が粉末成型プレスの100～800MPaの圧力による加圧成型であり、該加熱硬化が300℃以下の温度による加熱硬化であることを特徴とする圧粉磁心。

【請求項9】 該F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物が、p-(2,3-エポキシプロポキシ)フェニル基を3個以上含む、下記一般式(1)

【化5】



式中、nは3以上の整数である。

で表される多官能エポキシ樹脂100～50重量部と、p-(2,3-エポキシプロポキシ)フェニル基を2個有する二官能性エポキシ樹脂0～50重量部とを少なくとも含む熱硬化性樹脂組成物であることを特徴とする請求※

※ 求項8記載の圧粉磁心。

【請求項10】 該F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物が、下記一般式(2)、(3)又は(4)

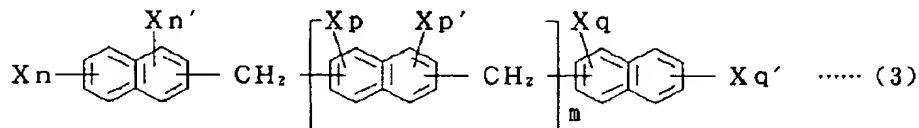
【化6】



式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\underset{|}{\text{CH}}}-\text{CH}_2-$  基(2,3-エポキシプロポキシ基)を示す。

n、mは1、2又は3である。

【化7】



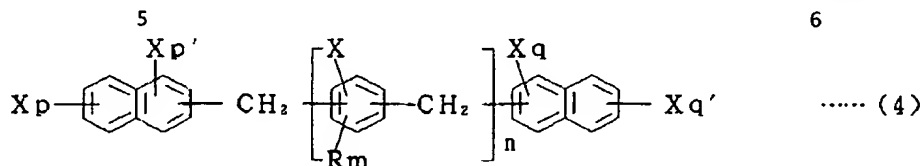
式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\underset{|}{\text{CH}}}-\text{CH}_2-$  基(2,3-エポキシプロポキシ基)を示す。

n、n'、p、p'、q、q'は0、1、2、3又は4である。

但し、n及びn'、p及びp'、q及びq'の両者が0になることはない。

nは0、1又は2である。

【化8】



式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\text{CH}-\text{CH}_2-$  基 (2, 3-エポキシプロポキシ基) を示す。

Rは炭素数1~10のアルキル基を示す。mは0、1又は2であり、nは1、2又は3である。

p、p'、q、q'は0、1、2、3又は4である。

但し、p及びp'、q及びq'の両者が0になることはない。

で表されるナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂を少なくとも含む熱硬化性樹脂組成物であることを特徴とする請求項8記載の圧粉磁心。

【請求項11】 該F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物が、アミノマレイミドを少なくとも含む熱硬化性樹脂組成物であることを特徴とする請求項8記載の圧粉磁心。

【請求項12】 該F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物が、ビスマレイミドを少なくとも含む熱硬化性樹脂組成物であることを特徴とする請求項8記載の圧粉磁心。

【請求項13】 該無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末が、偏平度7~10の金属磁性粉末であることを特徴とする請求項8記載の圧粉磁心。

【請求項14】 金属磁性粉末を絶縁剤で皮膜処理して、バインダを混合し、加圧成型及び加熱硬化してなる圧粉磁心であって、155℃に5000時間保持した後の0.5テスラ、15kHzにおける鉄損が初期の15倍以下であることを特徴とする圧粉磁心。

【請求項15】 金属磁性粉末を絶縁剤で皮膜処理して、バインダを混合し、加圧成型及び加熱硬化してなる圧粉磁心であって、155℃に5000時間保持した後の固有抵抗が初期の0.05倍以上であることを特徴とする圧粉磁心。

【請求項16】 金属磁性粉末を絶縁剤で皮膜処理して、バインダを混合し、加圧成型及び加熱硬化してなる圧粉磁心であって、155℃に5000時間保持した後の磁束密度が、周波数50Hz~500kHzの範囲で1テスラ以上である圧粉磁心。

【請求項17】 鉄心コアと巻線とを有するリアクトルにおいて、磷酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B及びFeを必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100~800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトル。

【請求項18】 鉄心コアとモールドコイルとを有する

リアクトルにおいて、磷酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B及びFeを必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100~800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトル。

【請求項19】 該モールドコイルが、F種以上の耐熱性を有し、熱伝導率が2~4W/Kmのモールドレジンでモールドしたコイルであることを特徴とする請求項18記載のリアクトル。

【請求項20】 該鉄心コアと該モールドコイルとの間に熱伝導率が0.2~4W/Kmの絶縁物を配したことを特徴とする請求項18記載のリアクトル。

【請求項21】 鉄心コアと巻線とを有するリアクトルにおいて、155℃に5000時間保持した後の0.5テスラ、15kHzにおける鉄損が初期の15倍以下である圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトル。

【請求項22】 鉄心コアと巻線とを有するリアクトルにおいて、155℃で5000時間保持した後の固有抵抗が初期の0.05倍以上である圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトル。

【請求項23】 鉄心コアと巻線とを有するリアクトルにおいて、155℃で5000時間保持した後の磁束密度が、周波数50Hz~500kHzの範囲で1テスラ以上である圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトル。

【請求項24】 半導体スイッチ素子とリアクトルの直列回路を有する半導体スイッチにおいて、磷酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B及びFeを必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100~800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心をリアクトルの鉄心コアとした半導体スイッチ。

【請求項25】 磷酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B及び

Fe を必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F 種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより 100～800 MPa の圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心をリアクトルの鉄心コアとした半導体スイッチを用いた直流送電バルブ。

【請求項 26】 磷酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B 及び Fe を必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F 種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより 100～800 MPa の圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心をリアクトルの鉄心コアとした半導体スイッチを用いた静止型無効電力補償装置。

【請求項 27】 磷酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B 及び Fe を必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F 種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより 100～800 MPa の圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心をリアクトルの鉄心コアとした半導体スイッチを用いたサイリスタモータ。

【請求項 28】 複数のスロットを有する鉄心コアと、該スロット内に収納される複数のコイルと、該複数のコイルと電気的に接続するための口出線とを備えた回転機固定子において、磷酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B 及び Fe を必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F 種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより 100～800 MPa の圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心を鉄心コアとしたことを特徴とする回転機固定子。

【請求項 29】 複数のスロットを有する鉄心コアと、該スロット内に収納される複数のコイルと、該複数のコイルと電気的に接続するための口出線とを備えた固定子、及び回転子を有する回転機において、磷酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B 及び Fe を必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F 種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより 100～800 MPa の圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心を固定子の鉄心コアとしたことを特徴とする回転機。

【請求項 30】 一次コイルと、二次コイルと、鉄心コアとを有する変圧器において、磷酸、酸化マグネシウム

及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B 及び Fe を必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F 種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより 100～800 MPa の圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心を鉄心コアとしたことを特徴とする変圧器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

10 【発明の属する技術分野】 本発明は、高耐熱性、高周波における高実効透磁率及び高磁束密度を有する圧粉磁心を作り得る圧粉磁心用樹脂組成物、圧粉磁心、並びにそれを用いたリアクトル、サイリスタバルブ、モータ、トランス等の電気機器に関する。

【0002】

【従来の技術】 交流を直流に変換する順変換装置（整流装置）、直流を交流に変換する逆変換装置（インバータ）、交流から負荷に送られる交流電力を制御する交流電力調整装置、ある周波数の交流を異なる周波数の交流に変換する周波数変換装置、直流電力を異なった電圧の直流電力に変換する直流変換装置あるいは無接点遮断機等の電気機器には、その電気回路構成要素として、サイリスタ又はトランジスタに代表される半導体スイッチング素子並びにこれに接続されたターンオンストレス緩和用リアクトル、転流リアクトル、エネルギー蓄熱用リアクトルあるいはマッチング用変圧器等が使用されている。このようなリアクトルや変圧器を構成している鉄心としては、層間絶縁を施した薄い電磁鋼板又はパーマロイ等を積層した積層鉄心が使われていた。

30 【0003】 しかし、前述のリアクトルや変圧器には、半導体のスイッチングに伴い、スイッチング周波数の周期を有する電流の他に、スイッチング周波数よりはるかに高い周波数である数 10 kHz から場合によっては 500 kHz を超える高周波数成分を有する電流が流れることがある。積層鉄心は、商用周波数帯域においては優れた電気特性を示すものの、高周波数帯域においては鉄心の鉄損失が著しい。特に、渦電流損失が周波数の二乗に比例して増加し、また鉄心を形成する板材の表面から内部に入るにつれて鉄心材料の表皮効果によって磁化力が変化しにくくなるという性質を有している。

40 【0004】 従って、積層鉄心は、高周波数帯域においては本来鉄心材料自身が有している飽和磁束密度よりも、はるかに低い磁束密度でしか使用することができず、渦電流損失も極めて大きいという問題がある。このため、高い周波数電流が流れる半導体スイッチング素子並びにこれに接続されたターンオンストレス緩和用リアクトル、転流リアクトル、エネルギー蓄熱用リアクトルあるいはマッチング用変圧器等に積層鉄心を使用する場合、実効透磁率及び磁束密度を補償するために、鉄心自身を大型化しなければならず、それに伴い、鉄損が大き

くなり、鉄心に巻かれているコイルの長さが長くなるため銅損も大きくなるという欠点があった。

【0005】一方、高周波用磁性材料としては、近年多用されているソフトフェライトがある。このソフトフェライトは前記電磁鋼板と比較すると高周波特性に優れ、鉄損値も低いが、磁束密度が低いという欠点があった。そのため、高周波で実効透磁率が高く、且つ磁束密度の高い鉄心の開発が強く望まれていた。また、金属磁性粉末を絶縁性の有機バインダと混合した後、加圧成型し、更に必要に応じてバインダを加熱硬化させて得られる圧粉磁心が知られている。この圧粉磁心は、「(1) 金属磁性粉末の電気抵抗を高くし、粉末粒子寸法を最適化して金属磁性粉末粒子内の渦電流を小さくすること、及び(2) 粉末粒子を相互に絶縁して粒子の直接接触をなくし、鉄心全体の渦電流損を小さくすること」の2つが実現できれば、良好な周波数特性が期待できる。また、飽和磁束密度の高い金属磁性粉末を用いて粉末粒子間の磁気的空隙を小さくし、磁性粉末の占積率を高くすることができれば、高周波において高実効透磁率を有するとともに、高磁束密度を有する圧粉磁心を得ることができ、前述のリアクトルや変圧器を構成している鉄心に有用となる。

【0006】そこで、近年圧粉磁心の検討が盛んに行われるようになってきた。圧粉磁心を前述のリアクトルに実用化する上でのキーポイントは、初期は勿論、155℃の温度で5000時間保持した後でも、金属磁性粉末粒子が相互に絶縁され、鉄損が少ないことである。このようなポイントに基づき、種々の圧粉磁心が提案されている。例えば、特開昭59-50138号公報や特開昭62-169402号公報に記載されているように金属磁性粉末をエポキシ樹脂やフッ素樹脂等の絶縁性の有機バインダで圧縮成型、被覆した圧粉磁心、特開昭55-130103号公報に記載されているように珪酸ソーダを主成分とする水ガラス等の無機物絶縁層で金属磁性粉末を被覆し、更にその上に有機物絶縁層を被覆した圧粉磁心、特開昭60-65509号公報に記載されているように酸素を含む雰囲気中で熱処理を施し、表面に絶縁性の酸化物を生成させた金属磁性粉末に絶縁性の有機バインダを加えて圧縮成型した圧粉磁心、特開昭61-82402号公報に記載されているように電気絶縁性無機化合物粉末を金属磁性粉末表面に被覆し、絶縁性の有機バインダで圧縮成型した圧粉磁心、特開平06-11008号公報に記載されているように、シラン系、チタン系界面活性剤で処理、絶縁した金属磁性粉末に、無機化合物粉末を添加した電気絶縁性の有機バインダを加え、圧縮成型した圧粉磁心、特公平1-51046号公報に記載されているように、燐酸エステルで被覆絶縁した金属磁性粉末に、電気絶縁性の固着樹脂を添加、圧縮成型した圧粉磁心、特開平06-260319号公報に記載されているように、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を

含む混合液で処理して、P、Mg、B及びFeを必須成分とするガラス状絶縁層を被覆した金属磁性粉末にエポキシ樹脂、イミド樹脂、フッ素樹脂等を添加、混合し、粉末成型プレスで固化成型するとともに、400~600℃で焼鈍して得られた圧粉磁心等がある。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】以上の圧粉磁心の中にも、金属磁性粉末粒子が相互に絶縁され、固有抵抗が0.1~10Ωcmで鉄損が少なく、周波数が50Hz~500kHzの範囲で磁束密度が1テスラ以上を示しているものがある。しかしながら、いずれの圧粉磁心も、155℃に5000時間保持すると金属磁性粉末粒子相互の絶縁が不十分になり、絶縁固有抵抗が低下し、鉄損が増大するという問題点があった。

【0008】本発明の目的は、上記問題点を解決し、155℃に5000時間保持しても金属磁性粉末粒子相互の絶縁を維持でき、0.1~10Ωcmの固有抵抗値を有し、鉄損が少なく、磁束密度が周波数50Hz~500kHzの範囲で1テスラ以上を示す圧粉磁心を製造し、これをコイル、リアクトル、サイリスタバルブ、モータ、トランス等の電気機器に適用することにある。

【0009】

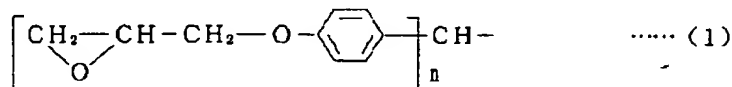
【課題を解決するための手段】上記課題に鑑み本発明者らは、金属磁性粉末の種類、形状や粒度分布、絶縁被膜の種類や量、バインダの種類や量、成型固化工程、加熱硬化工程等を種々検討した結果、金属磁性粉末の絶縁被膜の種類や量、バインダの種類や量、加熱硬化工程に問題があることを見出した。特に、金属磁性粉末の絶縁被膜として、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で磁性粉末を処理して得られたP、Mg、B及びFeを必須成分とするガラス状絶縁層が耐熱性の観点から好ましいことを見出した。

【0010】特開平06-260319号公報記載の発明では、金属磁性粉末と、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液とを混合し、該金属磁性粉末にP、Mg、B及びFeを必須成分とするガラス状絶縁皮膜を形成した混合体を調製し、該混合体を乾燥させて水分を除去する第1工程と、該乾燥させた混合体にエポキシ樹脂、イミド樹脂やフッ素樹脂を添加、混合し、粉末成型プレスで固化成型する第2工程と、該固化成型体の歪みを除くため400~600℃で1時間加熱、焼鈍する第3工程とを経て、圧粉磁心を製造しているが、この第3工程において、バインダであるエポキシ樹脂、イミド樹脂やフッ素樹脂が、熱劣化して分解することに問題があることが分かった。

【0011】その結果、耐熱性を有する無機絶縁層で被覆した金属磁性粉末に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100~800MPa、好ましくは400~700MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下、好ま

11

しくは250℃以下で加熱硬化して得られる圧粉磁心は、155℃に5000時間保持した後の固有抵抗が0.1~10Ωcmを示し、磁束密度が周波数50Hz~500kHzの範囲で1テスラ以上あり、リアクトル、サイリスタバルブ、モータ、トランス等の電気機器\*



式中、nは3以上の整数である。

【0013】で表される多官能エポキシ樹脂100~500重量部と、p-(2,3-エポキシプロポキシ)フェニル基を2個有する二官能性エポキシ樹脂0~50重量部とを少なくとも含む熱硬化性樹脂組成物0.5~8.0重量%、

\*の優秀な鉄心になることが分かった。即ち、本発明は、  
(A) ①p-(2,3-エポキシプロポキシ)フェニル基を3個以上含む、下記一般式(1)

【0012】

【化9】

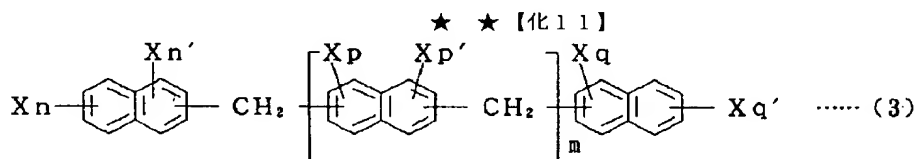
※0重量%、  
②下記一般式(2)、(3)もしくは(4)  
【0014】  
【化10】



式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\text{CH}}-\text{CH}_2-$  基(2,3-エポキシプロポキシ基)を示す。

n、mは1、2又は3である。

【0015】



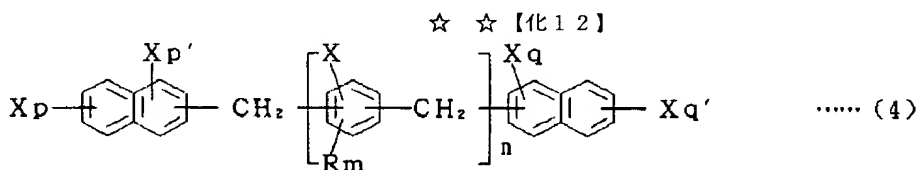
式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\text{CH}}-\text{CH}_2-$  基(2,3-エポキシプロポキシ基)を示す。

n、n'、p、p'、q、q'は0、1、2、3又は4である。

但し、n及びn'、p及びp'、q及びq'の両者が0になることはない。

nは0、1又は2である。

【0016】



式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\text{CH}}-\text{CH}_2-$  基(2,3-エポキシプロポキシ基)を示す。

Rは炭素数1~10のアルキル基を示す。mは0、1又は2であり、nは1、2又は3である。

p、p'、q、q'は0、1、2、3又は4である。

但し、p及びp'、q及びq'の両者が0になることはない。

【0017】で表されるナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂を少なくとも含む熱硬化性樹脂組成物0.5~8.0重量%、

③アミノマレイミド0.5~8.0重量%、

④ビスマレイミド100重量部と、ジアリルビスフェノール類50~100重量部とを少なくとも含む樹脂組成物0.5~

ール類50~100重量部とを少なくとも含む樹脂組成物0.5~8.0重量%、又は

⑤ビスマレイミド100重量部と、ジアリルビスフェノール類50~100重量部と、多官能性エポキシ樹脂0~100重量部とを少なくとも含む樹脂組成物0.5~



8.0重量%、並びに

(B) 無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末99.5~92.0重量%を含有する圧粉磁心用樹脂組成物である。

【0018】また、本発明は、(A) アミノマレイミド0.5~5.0重量%、(B) エポキシ樹脂0.5~5.0重量%、及び(C) 無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末99.0~90.0重量%を含有する圧粉磁心用樹脂組成物である。

【0019】さらに、本発明は、金属磁性粉末と、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液とを混合し、該金属磁性粉末にP、Mg、B及びFeを必須成分とするガラス状絶縁皮膜を形成した混合体を調製し、該混合体を乾燥させて水分を除去する第1工程と、該乾燥した混合体99.5~92.0重量%に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を0.5~8.0重量%添加、混合し、粉末成型プレスにより100~800MPaの圧力で固成型する第2工程と、該固成型体を300℃以下の温度で加熱硬化する第3工程とを備えたことを特徴とする圧粉磁心の製造方法である。

【0020】さらに、本発明は、金属磁性粉末に絶縁皮膜を形成した後、バインダを混合し、加圧成型及び加熱硬化してなる圧粉磁心において、該絶縁皮膜が燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して得られたP、Mg、B及びFeを必須成分とする無機絶縁皮膜であり、該バインダがF種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物であり、該加圧成型が粉末成型プレスの100~800MPaの圧力による加圧成型であり、該加熱硬化が300℃以下の温度による加熱硬化であることを特徴とする圧粉磁心である。

【0021】さらに、本発明は、金属磁性粉末を絶縁剤で皮膜処理して、バインダを混合し、加圧成型及び加熱硬化してなる圧粉磁心であって、155℃に5000時間保持した後の0.5テスラ、15kHzにおける鉄損が初期の15倍以下であるか、固有抵抗が初期の0.05倍以上であるか、磁束密度が周波数50Hz~500kHzの範囲で1テスラ以上である圧粉磁心である。

【0022】さらに、本発明は、鉄心コアと巻線又はモールドコイルとを有するリアクトルにおいて、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B及びFeを必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100~800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトルである。

【0023】さらに、本発明は、鉄心コアと巻線とを有するリアクトルにおいて、155℃に5000時間保持した後の0.5テスラ、15kHzにおける鉄損が初期の15倍以下であるか、固有抵抗が初期の0.05倍以上であるか、磁束密度が周波数50Hz~500kHz

の範囲で1テスラ以上である圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトルである。

【0024】さらに、本発明は、半導体スイッチ素子とリアクトルの直列回路を有する半導体スイッチにおいて、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B及びFeを必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100~800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心をリアクトルの鉄心コアとした半導体スイッチ、それを用いた直流送電バルブ、静止型無効電力補償装置及びサイリスタモータである。

【0025】さらに、本発明は、複数のスロットを有する鉄心コアと、該スロット内に収納される複数のコイルと、該複数のコイルと電気的に接続するための口出線とを備えた回転機固定子において、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B及びFeを必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100~800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心を鉄心コアとしたことを特徴とする回転機固定子、及びその固定子と回転子とを有する回転機である。

【0026】さらに、本発明は、一次コイルと、二次コイルと、鉄心コアとを有する変圧器において、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で金属磁性粉末を処理して、P、Mg、B及びFeを必須成分とする無機絶縁皮膜を形成した絶縁金属磁性粉末に、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100~800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心を鉄心コアとしたことを特徴とする変圧器である。

【0027】以下、本発明を詳細に説明する。本発明に用いられる金属磁性粉末としてはアトマイズ鉄粉、電解鉄分、センダスト粉、Fe-3Siに代表されるFe-Si合金粉、Fe-Al合金粉、Fe-Si-Al合金粉、Fe-Ni合金粉、Fe-Co合金粉、Fe基あるいはCo基非晶質合金等が挙げられるが、この他にも従来から鉄心材料として用いられているものであれば使用してもよい。これらの金属磁性粉末は、各々単独又は混合系で使用される。これらのうち、磁束密度の関係から高純度アトマイズ粉を使用するのが好ましい。

【0028】金属磁性粉末内に流れる渦電流を微小域に閉じ込めるため、上記金属磁性粉末を微粉化するのが好ましい。金属磁性粉末の平均粒径は2.5~450μm、特に5~150μmが好ましい。透磁率を高く保持するには、金属磁性粉末間の磁気的空隙を可能な限り減

少させて高密度化する必要がある。金属磁性粉末の充填率は充填量、粒度分布及び形状に支配される。金属磁性粉末が微粉ばかりの単分散品であると、金属磁性粉末の充填率は低い傾向にある。従って、金属磁性粉末を高密度充填するためには、金属磁性粉末の粒度分布を広くする必要がある。それには、例えば、平均粒径が大きい金属磁性粉末と平均粒径が小さい金属磁性粉末を混合すればよい。金属磁性粉末に微粉末、特に平均粒径 0.1 ~ 0.9  $\mu\text{m}$  の球状微粉末を 1 ~ 10 重量% 添加すると、コロの役目を果たして流動性がよくなり、高充填できるようになる。金属磁性粉末として鉄粉を用いる場合、圧粉磁心の密度を 6.4 ~ 6.7 にするのが好ましい。

【0029】金属磁性粉末は、加圧成型時に圧縮方向と垂直方向に並ぶため、磁気特性を向上させるために双ロールやボールミル等で金属磁性粉末を扁平加工するのが好ましい。特に、扁平度（平均直径/厚さ）を 7 ~ 10 にするのが好ましい。扁平加工した金属磁性粉末に微粉末、特に平均粒径 0.1 ~ 0.9  $\mu\text{m}$  の球状微粉末を 1 ~ 10 重量% 添加すると、コロの役目を果たして流動性がよくなるとともに、球状微粉末が扁平片の間に入り込み、高充填できるようになる。

【0030】高透磁率を得る目的で金属磁性粉末間の磁気的空隙を可能な限り減少させて高密度化するため、本発明に用いられる前記金属磁性粉末は、予め絶縁物で被膜処理し、金属磁性粉末に絶縁皮膜を形成してから加圧成型する。絶縁物として、エポキシ樹脂等の有機絶縁物、水ガラス等の無機絶縁物を用いると、加圧成型時の圧力で金属磁性粉末同士及び金属磁性粉末と成型金型との間で大きな摩擦力が発生したり、金属磁性粉末が塑性変形したりして、絶縁被膜が破壊し、金属磁性粉末の絶縁特性が低下する。

【0031】金属磁性粉末の絶縁皮膜としては耐熱性の無機絶縁皮膜が好ましい。そのような無機絶縁皮膜としては、例えば、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液に金属磁性粉末を処理して得られた P、Mg、B 及び Fe を必須成分とするガラス状の無機絶縁皮膜、燐酸及び酸化マグネシウムを含む混合液に処理して得られた P、Mg 及び Fe を必須成分とするガラス状の無機絶縁皮膜、燐酸亜鉛水溶液に処理して得られた無機絶縁皮膜、燐酸亜鉛及び硝酸カドミウムを含む混合水溶液に処理して得られた無機絶縁皮膜等がある。これらのうち、特に燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液に処理して得られた P、Mg、B 及び Fe を必須成分とするガラス状の無機絶縁皮膜が耐久性の面から好ましい。

【0032】燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液は、燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸を水に溶解す

ることによって得られる。燐酸、酸化マグネシウム及び硼酸の混合比率は、重量比で (3.0 ~ 6.5) : 1.0 : (0.5 ~ 1.5) が好ましい。酸化マグネシウムの添加量が多いと水に溶解し難くなり、燐酸の添加量が多いと磁束密度が低下する傾向にある。なお、金属磁性粉末との濡れ性を向上させるため、上記混合液に界面活性剤を添加するのが好ましい。

【0033】金属磁性粉末への絶縁被膜の形成は、常法によって行えばよいが、例えば金属磁性粉末と無機絶縁物（混合液）とを混合し、得られた混合物を乾燥させ、水分を除去することによって行うことができる。絶縁被膜を形成した金属磁性粉末は、次に耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物（バインダー）と混合し、固化成型する。その混合比は、無機絶縁物被覆金属磁性粉末 99.5 ~ 90.0 重量% に対して熱硬化性樹脂組成物 0.5 ~ 10.0 重量% であるのが好ましい。

【0034】本発明における耐熱性熱硬化性樹脂組成物は、300℃以下、好ましくは 250℃以下の温度で加熱硬化後 F 種以上の耐熱性を示すものであって、無機絶縁被膜した金属磁性粉末を強固に固着できるものであれば、特に制限はない。そのような熱硬化性樹脂組成物としては、例えば、(a) 少なくとも多官能エポキシ樹脂と酸無水物もしくはフェノール硬化剤とを含有する多官能エポキシ樹脂組成物、又は (b) 熱硬化性マレイミド系樹脂組成物がある。

【0035】多官能エポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノール A のジグリシジルエーテル、ビスフェノール F のジグリシジルエーテル、ビスフェノール AD のジグリシジルエーテル、水添化ビスフェノール A のジグリシジルエーテル、2, 2'-(4-ヒドロキシフェニル)ノナデカンのジグリシジルエーテル、4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロピル)ジフェニルエーテル、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル-(3, 4-エポキシ)シクロヘキサンカルボキシレート、4-(1, 2-エポキシプロピル)-1, 2-エポキシシクロヘキサン、2-(3, 4-エポキシ)シクロヘキシル-5, 5-スプロ(3, 4-エポキシ)-シクロヘキサン-m-ジオキサン、3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシルメチル-4-エポキシ-6-メチルシクロヘキサンカルボキシレート等の二官能性エポキシ樹脂、フェノールノボラック樹脂、ビスフェノール A のノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノール F のノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノール AD のノボラック型エポキシ樹脂、下記一般式(2)、(3)又は(4)

【0036】

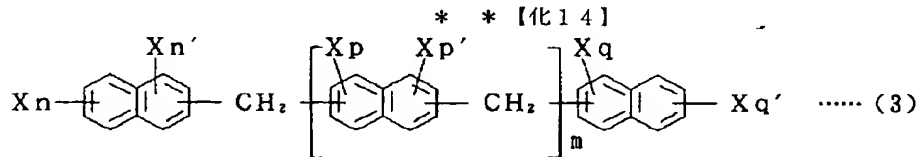
【化13】



式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\text{CH}-\text{CH}_2-$  基 (2, 3-エポキシプロポキシ基) を示す。

n, mは1, 2又は3である。

【0037】



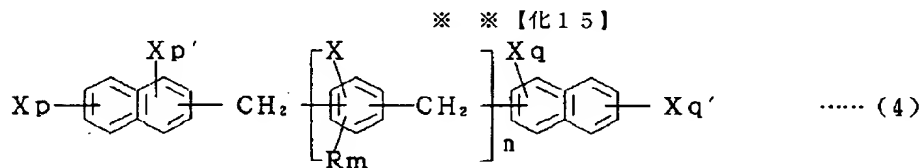
式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\text{CH}-\text{CH}_2-$  基 (2, 3-エポキシプロポキシ基) を示す。

n, n', p, p', q, q'は0, 1, 2, 3又は4である。

但し、n及びn', p及びp', q及びq'の両者が0になることはない。

nは0, 1又は2である。

【0038】



式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\text{CH}-\text{CH}_2-$  基 (2, 3-エポキシプロポキシ基) を示す。

Rは炭素数1~10のアルキル基を示す。mは0, 1又は2であり、nは1, 2又は3である。

p, p', q, q'は0, 1, 2, 3又は4である。

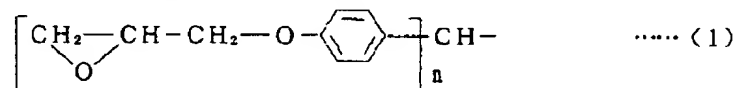
但し、p及びp', q及びq'の両者が0になることはない。

【0039】で表されるナフタレン骨格エポキシ樹脂、アントラセンジオールのジグリシジルエーテル、アントラセントリオールのトリグリシジルエーテル等のアントラセン骨格エポキシ樹脂、p-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル基を2個有する二官能性エポキシ樹脂★

★0~50重量部と、p-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル基を3個以上含む、下記一般式(1)

【0040】

【化16】



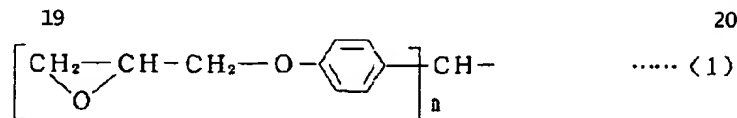
式中、nは3以上の整数である。

【0041】で表される多官能エポキシ樹脂、即ち、トリス [p-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]メタン、1, 1, 3-トリス [p-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]ブタン、1, 1, 2, 2-テトラキス [p-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]エタン、1, 1, 3, 3-テトラキス [p-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]プロパン、1,

1, 3-トリス [p-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]プロパン等の多官能性エポキシ樹脂1.00~50重量部とを少なくとも含むエポキシ樹脂等がある。上記エポキシ樹脂の中でも、p-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル基を3個以上含む、下記一般式(1)

【0042】

【化17】



式中、nは3以上の整数である。

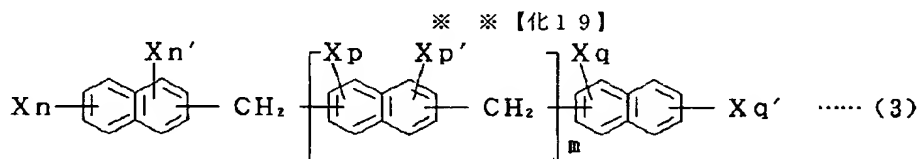
【0043】で表される多官能エポキシ樹脂、及び下記一般式(2)、(3)又は(4) \* 【0044】  
\* 【化18】



式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\text{CH}}-\text{CH}_2-$  基(2,3-エポキシプロポキシ基)を示す。

n, mは1, 2又は3である。

【0045】



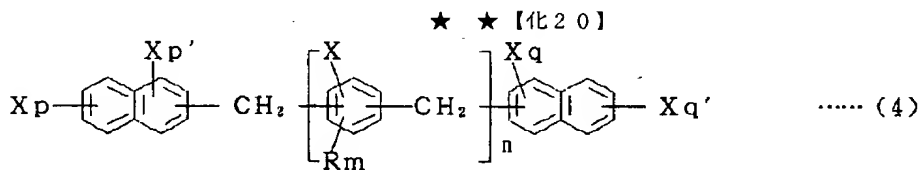
式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\text{CH}}-\text{CH}_2-$  基(2,3-エポキシプロポキシ基)を示す。

n, n', p, p', q, q'は0, 1, 2, 3又は4である。

但し、n及びn', p及びp', q及びq'の両者が0になることはない。

nは0, 1又は2である。

【0046】



式中、Xは  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\text{CH}}-\text{CH}_2-$  基(2,3-エポキシプロポキシ基)を示す。

Rは炭素数1~10のアルキル基を示す。mは0, 1又は2であり、nは1, 2又は3である。

p, p', q, q'は0, 1, 2, 3又は4である。

但し、p及びp', q及びq'の両者が0になることはない。

【0047】で表されるナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂が好ましく、このエポキシ樹脂を少なくとも含む熱硬化性樹脂組成物を用いた場合、無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末99.5~92.0重量%に対して0.5~8.0重量%使用するのが好ましい。

【0048】また、(a)ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、(b)ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、(c)ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、(d)トリス(4-ヒドロキシフェニル)アルカン及び(e)テトラキス(4-ヒドロキシフェニル)アルカンから選ばれる少なくとも二種類以上の多価フェノールの混合物と、エピクロヒドリンとを反応させて得られる多

官能エポキシ樹脂も、硬化前に低粘度であるため作業性が良好で、しかも硬化後に高耐熱性を有することから有用である。

【0049】トリス(4-ヒドロキシフェニル)アルカン(d)としては、トリス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、トリス(4-ヒドロキシフェニル)ニタン、トリス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、トリス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、トリス(4-ヒドロキシフェニル)ヘキサン、トリス(4-ヒドロキシフェニル)ヘプタン、トリス(4-ヒドロキシフェニル)オクタン、トリス(4-ヒドロキシフェニル)ノナン等がある。また、トリス(4-ヒドロキシジメチルフェニル)

メタンなどのトリス（４－ヒドロキシフェニル）アルカン誘導体を用いてもよい。

【００５０】テトラキス（４－ヒドロキシフェニル）アルカン(e)としては、テトラキス（４－ヒドロキシフェニル）メタン、テトラキス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、テトラキス（４－ヒドロキシフェニル）プロパン、テトラキス（４－ヒドロキシフェニル）ブタン、テトラキス（４－ヒドロキシフェニル）ヘキサン、テトラキス（４－ヒドロキシフェニル）ヘプタン、テトラキス（４－ヒドロキシフェニル）オクタン、テトラキス（４－ヒドロキシフェニル）ノナン等がある。また、テトラキス（４－ヒドロキシジメチルフェニル）メタンなどのテトラキス（４－ヒドロキシフェニル）アルカン誘導体を用いてもよい。

【００５１】このうち、耐熱性と粘度の観点から、トリス[p-（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル]メタン、１，１，３－トリス[p-（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル]ブタン、１，１，２，２－テトラキス[p-（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル]エタン、１，１，３，３－テトラキス[p-（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル]プロパン、１，１，３－トリス[p-（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル]プロパン等の多官能性エポキシ樹脂と、ビスフェノールＡのジグリシジルエーテル、ビスフェノールＦのジグリシジルエーテル又はビスフェノールＡＤのジグリシジルエーテルとの併用が好ましい。

【００５２】この場合、三官能以上の多官能エポキシ樹脂と二官能性エポキシ樹脂との配合割合は、特に制限はないが、多官能エポキシ樹脂１重量部に対して二官能性エポキシ樹脂を０．１～１．９重量部配合するのが好ましい。多官能エポキシ樹脂が多くなると、硬化前の粘度が高くなるとともに硬化後に固く脆くなる傾向にあり、逆に二官能性エポキシ樹脂が多くなると、粘度は低下するが、耐熱性が低下する傾向にある。粘度と耐熱性を両立させるには、多官能エポキシ樹脂１重量部に対して二官能性エポキシ樹脂を１～９重量部配合するのが特に好ましい。また、ナフタレンジオールのジグリシジルエーテル等のナフタレンやアントラセン骨格エポキシ樹脂を含む組成物が、耐熱性と粘度の観点から好ましい。

【００５３】本発明に用いられる酸無水物としては、一般的な酸無水物であれば特に制限はない。そのような化合物としては、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、ナジック酸無水物、メチルナジック酸無水物、ドデシル無水コハク酸、無水コハク酸、オクタデシル無水コハク酸、無水マレイン酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸無水物などがあり、単独で又は２種以上を混合して用いることができる。これらのうち、耐熱性の観点からナジック酸無水物又はメチルナジック酸無水物を含有するのが好ましい。

【００５４】本発明に用いられるフェノール硬化剤としては、フェノール性水酸基を２個以上有するフェノール樹脂であれば特に制限はない。そのようなフェノール樹脂としては、例えば、フェノールノボラック、クレゾールノボラック、キシレゾールノボラック、ビスフェノールＡのノボラック、ビスフェノールＦのノボラック、ビスフェノールＡＤのノボラック、ポリロービニルフェノール、レゾール型フェノール等があり、単独で又は２種以上を混合して用いることができる。

【００５５】本発明のエポキシ樹脂組成物を硬化させる際、必要に応じて、硬化触媒を熱硬化性樹脂組成物に添加してもよい。硬化触媒は、多官能エポキシ樹脂と硬化剤との反応を加速させる働きがあれば、特に制限はない。そのような硬化触媒としては、例えば、トリメチルアミン、トリエチルアミン、テトラメチルブタンジアミン、トリエチレンジアミン等の３級アミン類、ジメチルアミノエタノール、ジメチルアミノペンタノール、トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール、Ｎ－メチルモルフォリン等のアミン類、また、セチルトリメチルアンモニウムプロマイド、セチルトリメチルアンモニウムクロライド、ドデシルトリメチルアンモニウムプロマイド、ドデシルトリメチルアンモニウムクロライド、ドデシルトリメチルアンモニウムアイオダイド、ペンジルジメチルテトラデシルアンモニウムクロライド、ペンジルジメチルトリメチルアンモニウムプロマイド、アリルドデシルトリメチルアンモニウムプロマイド、ペンジルジメチルステアリルアンモニウムプロマイド、ステアリルトリメチルアンモニウムクロライド、ペンジルジメチルテトラデシルアンモニウムアセチレート等の第４級アンモニウム塩、２－メチルイミダゾール、２－エチルイミダゾール、２－ウンデシルイミダゾール、２－ヘプタデシルイミダゾール、２－メチル－４－エチルイミダゾール、１－ブチルイミダゾール、１－プロピル－２－メチルイミダゾール、１－ベンジル－２－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾール、１－シアノエチル－２－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－ウンデシルイミダゾール、１－アジン－２－メチルイミダゾール、１－アジン－２－ウンデシル等のイミダゾール類、アミンとオクタン酸亜鉛やコバルト等との金属塩、１，８－ジアザビシクロ〔５．４．０〕－ウンデセン－７、Ｎ－メチル－ピペラジン、テトラメチルブチルグアニジン、トリエチルアンモニウムテトラフェニルボレート、２－エチル－４－メチルテトラフェニルボレート、１，８－ジアザビシクロ〔５．４．０〕－ウンデセン－７－テトラフェニルボレート等のアミンテトラフェニルボレート、トリフェニルホスフィン、トリフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、アルミニウムトリアルキルアセトアセテート、アルミニウムトリシアセチルアセトアセテート、アルミニウムアルコラ

ート、アルミニウムアシレート、ソジウムアルコラートなどが挙げられる。このような硬化触媒は、熱硬化性樹脂組成物に対して、0.01~5重量%添加するのが一般的である。

【0056】その他、必要に応じて希釈剤としてシクロヘキセンビニルモノオキシド、オクチレンオキシド、ブチルグリシジルエーテル、スチレンオキシド、フェニルグリシジルエーテル、グリシジルメタクリレート、アリルグリシジルエーテル等のモノエポキシ樹脂等を添加してもよい。しかし、一般に希釈剤は粘度を下げる効果はあるものの、耐熱性を低下させることが多いため、少量に抑えるのが好ましい。

【0057】本発明における熱硬化性マレイミド系樹脂組成物は、300℃以下、好ましくは250℃以下の温度で加熱硬化後F種以上の耐熱性を示し、無機絶縁被膜した金属磁性粉末を強固に固着できるものであって、付加硬化型のマレイミド化合物を含むものであれば、特に制限はない。そのような熱硬化性マレイミドとしては、例えば、N, N'-エチレンビスマレイミド、N, N'-ヘキサメチレンビスマレイミド、N, N'-ドデカメチレンビスマレイミド、N, N'-m-キシリレンビスマレイミド、N, N'-p-キシリレンビスマレイミド、N, N'-1, 3-ビスメチレンシクロヘキサジエンビスマレイミド、N, N'-1, 4-ビスメチレンシクロヘキサジエンビスマレイミド、N, N'-2, 4-トリリレンビスマレイミド、N, N'-2, 6-トリリレンビスマレイミド、N, N'-3, 3'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-(3-エチル)-3, 3'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-(3, 3'-ジエチル)-3, 3'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-(3, 3'-ジクロロ)-3, 3'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-4, 4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-(3-エチル)-4, 4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-(3, 3'-ジメチル)-4, 4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-(3, 3'-ジエチル)-4, 4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-(3, 3'-ジクロロ)-4, 4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-3, 3'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-4, 4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-3, 3'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-4, 4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-p-ベンゾフェノンビスマレイミド、N, N'-4, 4'-ジフェニルエタンビスマレイミド、N, N'-4, 4'-ジフェニルエーテルビスマレイミド、N, N'-(メチレン-ジテトラヒドロフェニル)ビスマレイミド、N, N'-トリジンビスマレイミド、N, N'-

ーイソフロロンビスマレイミド、N, N'-p-ジフェニルジメチルシリルビスマレイミド、N, N'-4, 4'-ジフェニルプロパンビスマレイミド、2, 2'-ビス(4-(4-(3-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパン、N, N'-ナフタレンビスマレイミド、N, N'-p-フェニレンビスマレイミド、N, N'-m-フェニレンビスマレイミド、N, N'-4, 4'-(1, 1'-ジフェニルシクロヘキサン)-ビスマレイミド、N, N'-3, 5-(1, 2, 4-トリアゾール)-ビスマレイミド、N, N'-ビリジン-2, 6-ジイルビスマレイミド、N, N'-5-メトキシ-1, 3-フェニレンビスマレイミド、1, 2-ビス(2-マレイミドエトキシ)-エタン、1, 3-ビス(3-マレイミドプロポキシ)-プロパン、N, N'-4, 4'-ジフェニルメタン-ビス-ジメチルマレイミド、N, N'-ヘキサメチレン-ビス-ジメチルマレイミド、N, N'-4, 4'-(ジフェニルエーテル)-ビス-ジメチルマレイミド、N, N'-4, 4'-(ジフェニルスルホン)-ビス-ジメチルマレイミド、4, 4'-ジアミノ-トリフェニルホスフェートのN, N'-ビスマレイミド、2, 2'-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパンのN, N'-ビスマレイミド、2, 2'-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニルメタン]のN, N'-ビスマレイミド、2, 2'-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニルエタン]のN, N'-ビスマレイミド等々に代表される二官能性マレイミドのほか、アニリンとホルマリンとの反応生成物(ポリアミン化合物)、3, 4, 4'-トリアミノジフェニルメタン、トリアミノフェノール等と無水マレイン酸との反応で得られる多官能マレイミド、フェニルマレイミド、トリルマレイミド、キシリルマレイミド等のモノマレイミドが挙げられる。

【0058】上記付加硬化型のマレイミドには、トリアリルトリメリテート、ジアリルテレフタレート、ジアリルイソフタレート、p, p'-ジアリロキシカルボニルカルボニルジフェニルエーテル、m, p'-ジアリロキシカルボニルカルボニルジフェニルエーテル、o, p'-ジアリロキシカルボニルカルボニルジフェニルエーテル、m, m'-ジアリロキシカルボニルカルボニルジフェニルエーテル、トリアリルイソシアヌレート、トリアリルシアヌレート等の多価カルボン酸アリルエステル、スチレン、上記アルケニルフェノール化合物、アルケニルアミン化合物、酸無水物、エポキシ樹脂、ジアミン化合物等を添加してもよいし、変性してもよい。

【0059】これらのうち、上記付加硬化型のマレイミドと酸無水物もしくはエポキシ樹脂との併用もしくは変性、上記付加硬化型のマレイミドと、酸無水物もしくはエポキシ樹脂と、アルケニルフェノール化合物もしくはアルケニルアミン化合物との併用もしくは変性、又は上記付加硬化型のマレイミドと、多価カルボン酸アリルエ

ステルと、アルケニルフェノール化合物、アルケニルアミン化合物もしくはジアミンとの併用もしくは変性が、耐熱性と粘度を両立させる観点から好ましい。

【0060】特に好ましくは、①アミノマレイミド、②ビスマレイミド100重量部とジアリルビスフェノール類50～100重量部とを少なくとも含む樹脂組成物、又は③ビスマレイミド100重量部とジアリルビスフェノール類50～100重量部と、多官能性エポキシ樹脂0～100重量部とを少なくとも含む樹脂組成物を用いることができる。この場合、無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末99.5～92.0重量%に対して、樹脂(組成物)を0.5～8.0重量%使用するのが好ましい。

【0061】また、好ましくはアミノマレイミド及びエポキシ樹脂を併用して用いることもできるが、この場合は、アミノマレイミド0.5～5.0重量%、エポキシ樹脂0.5～5.0重量%、及び無機絶縁被膜処理した金属磁性粉末99.0～90.0重量%の混合比で使用するのが好ましい。本発明の熱硬化性マレイミド系樹脂組成物は、硬化触媒がなくても十分に硬化し得るが、更に反応を促進したい場合には、必要に応じて、硬化触媒を熱硬化性樹脂組成物又は絶縁基材に添加してもよい。硬化触媒は、熱硬化性マレイミド系樹脂組成物の反応を加速させる働きがあれば、特に制限はない。そのような硬化触媒としては、例えば、イオン系触媒又はフリーラジカル系触媒が有効である。

【0062】この硬化触媒は、熱硬化性マレイミド系樹脂組成物を基準にして0.05～10重量%、特に0.1～5重量%用いるのが好ましい。イオン系触媒としては、上記酸無水物硬化エポキシ樹脂組成物で用いる硬化触媒と同様のものが使用できる。フリーラジカル系触媒としては、公知の有機過酸化物、ヒドロペルオキシド、アゾイソブチロニトリル等が使用できる。

【0063】本発明に用いられる耐熱性熱硬化性樹脂組成物には、無機絶縁被膜を施した金属磁性粉末との濡れ性を改善するために、界面活性剤を添加するのが好ましい。そのような界面活性剤としては、例えば、 $\gamma$ -クロロプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリクロルシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニル・トリス( $\beta$ -メトキシエトキシ)シラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- $\beta$ -(アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -ユレイドプロピルトリエトキシシラン等のシラン系界面活性剤、イソプロピルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルメタクリロイルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリドデシルチタネート、イソプロピルイソステ

アロイルジアクリルチタネート、イソプロピルトリス(ジオクチルホスフェート)チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、イソプロピルトリス(ジオクチルパイロホスフェート)チタネート、イソプロピルトリス( $n$ -アミノエチル-アミノエチル)チタネート、テトライソプロピルビス(ジオクチルホスファイト)チタネート、テトラオクチルビス(ジドデシルホスファイト)チタネート、テトラ(2,2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル)ビス(ジトリデシル)ホスファイトチタネート、ジイソステアロイルエチレンチタネート、ビス(ジオクチルパイロホスフェート)エチレンチタネート等のチタネート系界面活性剤、エチルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート、アルミニウムトリス(エチルアセトアセテート)等のアルミニウム系界面活性剤、あるいはジルコニウム系界面活性剤等があり、2種以上を混合して使用してもよい。

【0064】これらのうち、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- $\beta$ -(アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、イソプロピルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、エチルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート、アルミニウムトリス(エチルアセトアセテート)が好ましい。特に、低粘度化のために、イソプロピルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート等の一官能性の界面活性剤と、耐クラック性や機械強度向上のために、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- $\beta$ -(アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン等の多官能の界面活性剤を併用するのが好ましい。

【0065】これら界面活性剤は、予め金属磁性粉末に処理しても、後から樹脂組成物に加えてもよく、またその両方を併用してもよい。界面活性剤の好ましい添加量は、(金属磁性粉末の比表面積( $\text{m}^2/\text{gr}$ ) $\times$ 金属磁性粉末の重量( $\text{gr}$ ))/界面活性剤の被覆面積( $\text{m}^2/\text{gr}$ )で計算することができる。但し、金属磁性粉末の比表面積が不明の場合あるいは表面状態が著しく複雑な場合、金属磁性粉末に対して1重量%を基準にして、適宜増減しながら使用量を求めることができる。

【0066】本発明の熱硬化性樹脂組成物は、必要に応じて変性することも有効である。例えば、スチレンやメチルメタクリレート等のビニル化合物モノマーによる変性、ポリブタジエン、ポリクロロブレン等のゴムによる変性、不飽和ポリエステル変性、脂肪族アミン、芳香族アミン、アリルアミン等のアミンによる変性、フラン系

10

20

30

40

50

化合物やフェノール化合物により変性することができる。また、シリカ粉、石英ガラス粉、アルミナ粉等のほか、水和アルミナ、水和マグネシウム、炭酸カルシウム、ケイ酸ジルコニウム、ケイ酸カルシウム、タルク、クレー、マイカ、ガラス繊維粉等の無機充填剤を添加することも可能である。

【0067】以上説明した熱硬化性樹脂組成物と、無機絶縁物被覆金属磁性粉末とを混合したら、この混合物を成型用金型に充填し、粉末成型プレスを用いて固化成型する。この固化成型工程では、100～800MPa、好ましくは400～700MPaの圧力で加圧成型する。100MPa未満の圧力では、十分に固化成型することができず、800MPaを超える圧力では、無機絶縁皮膜が破壊され、固有抵抗が低下する傾向にある。

【0068】固化成型工程により所望の形状を有する成型体が得られたら、加熱硬化・固着させ、圧粉磁心とする。加熱硬化工程における加熱は、300℃以下、好ましくは250℃以下で行う。300℃を超えると、熱硬化性樹脂が劣化する傾向にある。

【0069】以上のようにして得られる圧粉磁心は、155℃に5000時間保持しても金属磁性粉末粒子相互の絶縁が維持され、金属磁性粉末同士の接触による渦電流損の増大を抑制でき、高い周波数帯域まで透磁率を低下させずに保つことができる。具体的には、155℃に5000時間保持した後、0.5テスラ、15kHzにおける鉄損が初期の15倍以下であり、固有抵抗が初期の0.05倍以上であり、また磁束密度が、周波数50Hz～500kHzの範囲で1テスラ以上である圧粉磁心が得られる。このように優れた特性を有する圧粉磁心は、鉄心コアとすることにより、種々の電気機器に適用することができる。そのような電気機器としては、例えば、リアクトル、回転機固定子、それを用いた回転機、変圧器等が挙げられる。リアクトルは、鉄心コアと巻線とを有するものであってもよいし、鉄心コアとモールドコイルとを有するものであってもよい。モールドコイルは、F種以上の耐熱性を有し、熱伝導率が2～4W/Kmのモールドレジンでモールドしたコイルであるのが好ましい。

【0070】本発明の圧粉磁心を用いた鉄心コアを有するリアクトルは、耐熱性に優れているため、冷却ファンを設けたり水冷したりする必要がない。なお、熱放散性をさらに向上させるために、鉄心コアとモールドコイルとの間に高熱伝導性を有する絶縁物を設置してもよい。この絶縁物の熱伝導率は、0.2～4W/Kmであるのが好ましい。

【0071】回転機固定子は、いかなるものであってもよいが、通常、複数のスロットを有する鉄心コアと、そのスロット内に収納される複数のコイルと、その複数のコイルと電気的に接続するための口出線とを備えており、該鉄心コアに本発明の圧粉磁心を用いればよい。こ

の固定子と回転子とを組み合わせることにより、回転機が得られる。変圧器もいかなるものであってもよいが、通常、一次コイルと二次コイルと鉄心コアとを有しており、該鉄心コアに本発明の圧粉磁心を用いればよい。

【0072】上記リアクトルは、半導体スイッチに適用することができる。例えば、リアクトルと半導体スイッチ素子を直列回路に構成することにより、スイッチの電流立ち上がりを緩やかにし、半導体スイッチ素子の破損を防止することができる。半導体スイッチ素子としては、いかなるものであってもよいが、例えばGTO、サイリスタ、IGBT等を用いることができる。なお、この半導体スイッチにおける半導体スイッチ素子のアノード端子とカソード端子の間には、抵抗器及びコンデンサの直列回路からなるサージ吸収回路を設けてもよい。

【0073】急瞬な電流変化を抑制するリアクトルの鉄心材に圧粉磁心を用いた半導体スイッチの構成例を図13～17により説明する。ここでは、半導体スイッチを構成するスイッチ素子としてサイリスタ素子を用いた場合の高耐電圧半導体スイッチの回路構成例を示す。図13は回路構成であり、高耐電圧化のため、サイリスタ素子101～10nを直列接続している。各サイリスタ素子のアノード端子とカソード端子の間には、抵抗器131～13nとコンデンサ141～14nの直列回路からなるサージ吸収回路を設けている。

【0074】図14は、図13の高耐電圧半導体スイッチを実現する場合の実装構成例であり、6個のサイリスタ素子101～106を設置したものである。各サイリスタ素子は、金属製の冷却フィン151～157で挟むことにより固定している。従って、各冷却フィンは各サイリスタ素子の端子電極板の役割をも果たすものであり、抵抗器131～136とコンデンサ141～146とから構成されるサージ吸収回路は、各冷却フィンに接続されている。

【0075】図14の半導体スイッチの冷却は、小型化のため、一般に水冷却方式が採用される。図15は水冷却系の構成例を示しており、水冷却方式のリアクトル11、12、冷却フィン151～156及び抵抗器131～136が水パイプ17で直列に接続されている。水冷却方式のリアクトルは、一般にパイプ状のコイルの内部に冷却水を通す構造となっているため、鉄心の渦電流損あるいはヒステリシス損により発生する熱を冷却するには、別の冷却手段を鉄心に設ける必要がある。しかし、本発明の圧粉磁心を鉄心に用いれば、発生熱が小さく、また、熱による磁心材料特性の劣化（損失増加）も少ないので、鉄心の冷却手段を不要とすることも可能である。

【0076】図16は、図14に示す半導体スイッチ16と同じ構成の半導体スイッチ複数個161、162、163・・・を絶縁柱18により連結し、スイッチ161、162、163・・・間に電気配線を施すことによ



り、更に高い耐電圧性を有するスイッチ群を構成したものである。以下、図 16 に示す構成のスイッチ群をバルブと呼ぶことにする。

【0077】このような半導体スイッチ（群）は、種々の電気機器に適用することができ、例えば、直流送電バルブ、静止型無効電力補償装置、サイリスタモータ等に適用することができる。図 17 は、複数のバルブで構成した電力変換装置の一例である。バルブ 221~226 を有する電力変換装置 19 は、交流電力を直流電力に、また、逆に直流電力を交流電力に変換することができ、交流系統 20 と直流系統 21 との間の電力融通を可能にする。このような大電力の電力変換装置 21 の応用分野としては、直流送電、無効電力補償装置などがある。

【0078】

【実施例】以下、本発明を実施例により更に具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されない。なお、例中で用いた化合物の略号は下記の通りである。

TKEPPE: 1, 1, 2, 2-テトラキス [p-(2, 3-エポキシプロポキシ) フェニル] エタンエポキシ当量 192

TEPPM: 1, 1, 3-トリス [p-(2, 3-エポキシプロポキシ) フェニル] メタン エポキシ当量 161

TEPPB: 1, 1, 3-トリス [p-(2, 3-エポキシプロポキシ) フェニル] ブタン エポキシ当量 196

DGEBPA: ビスフェノール A のジグリシジルエーテル エポキシ当量 175

DGEBPF: ビスフェノール F のジグリシジルエーテル エポキシ当量 170

1, 2-DGON: 1, 2-ジグリシジルオキシナフタレン エポキシ当量 141

1, 3-DGON: 1, 3-ジグリシジルオキシナフタレン エポキシ当量 141

PDGON: 高分子量化 1, 6-ジグリシジルオキシナフタレン エポキシ当量 250 軟化点 67℃

GONDGONM: 1-(2-グリシジルオキシ-1-ナフチル)-1-(2', 7'-ジグリシジルオキシ-1-ナフチル) メタン

エポキシ当量 187 軟化点 75℃

PGENCN: クレゾールと 2-ヒドロキシナフタレン混合物のノボラックのポリグリシジルエーテル エポキシ当量 225 軟化点 84℃

TGIC: トリグリシジルイソシアヌレート エポキシ当量

MHAC-P: メチルナジック酸無水物 酸無水物当量 178

PN: フェノールノボラック 水酸基当量 106

BMI: 4, 4'-ジフェニルメタンビスマレイミド

DAPPI: 2, 2'-ビス [4-(4-マレイミドフェノキシ) フェニル] プロパン

DAM: 4, 4'-ジアミノジフェニルメタン アミン当量 92.1

DADPE: 4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル アミン当量 93.1

DABA: ジアリルビスフェノール A

DABF: ジアリルビスフェノール F

DAP: ジアミノフェノール

DGEDABA: ジアリルビスフェノール A のジグリシジルエーテル

TAIC: トリアリルイソシアヌレート

BTPP-K: トリフェニルプロピルホスフィンテトラフェニルボレート

2E4MZ-K: 2-エチル-4-メチルイミダゾールテトラフェニルボレート

TPP: トリフェニルホスフィン

TPP-K: トリフェニルホスフィンテトラフェニルボレート

IOZ: 2-エチル-4-メチルイミダゾールとオクタン酸亜鉛塩との塩

C11Z-AZINE: 1-アジン-2-ウンデシルイミダゾール

TEA-K: トリエチルアミンテトラフェニルボレート

2E4MZ-CN: 1-シアノエチル-2-エチル-4-メチルイミダゾール

KBM-603: N-β-(アミノエチル)-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン

S-181: トリスイソステアロイルオキシイソプロポキシチタニウム

IPZ: テトライソプロピルジルコネート

【0079】〔実施例 1〕

(1) 熱硬化性樹脂組成物 A の作製

表 1 に記載の配合量でビスマレイミド BMI、ジアリルフェノール類 DABF 及び TAIC を混合し、湯浴中で 130℃ まで加熱し、完全に溶解させた。130℃ で 10 分間保ち、熱硬化性マレイミド系樹脂組成物を作製した。これに表 1 に記載の硬化触媒 2E4MZ-CN を加えて、熱硬化性樹脂組成物 A とした。

【0080】(2) 無機絶縁層で被覆した金属磁性粉末の作製

平均粒径 75 μm (最大粒径 250 μm) 及び平均粒径 60 μm (最大粒径 106 μm) の高純度アトマイズ鉄粉をボールミルで扁平度 (平均直径/厚さ) 約 8 に扁平加工した。

50 【0081】一方、燐酸 H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> を 0.386 g、硼酸

H<sub>2</sub>BO<sub>3</sub>を0.060g、MgOを0.062g、シラン系界面活性剤 KBM-603を0.05g、水を50g混合、攪拌して表5中の実施例1の欄記載の絶縁処理液を作製した。この絶縁処理液と、上記偏平加工した高純度アトマイズ鉄粉1kgとを混合した。この混合体を300℃で20分間乾燥させて、無機絶縁層で被覆した金属磁性粉末を得た。

#### 【0082】(3) 圧粉磁心の作製

得られた金属磁性粉末と熱硬化性樹脂組成物Aとを重量比97:3の配合比で混合し、圧粉磁心用樹脂組成物を得た。得られた圧粉磁心用樹脂組成物を、表5中の成型圧力の欄記載の圧力条件(600MPa)で粉末成型プレスによって所定の形状に固化成型した。次いで、この固化成型体を150℃/1時間+200℃/4時間+250℃/4時間加熱、硬化して圧粉磁心を得た。

#### 【0083】(4) 圧粉磁心の諸特性の測定

上記の条件で成型、硬化して得られた31.7mm×12.7mm×5mmの大きさの圧粉磁心の曲げ強さを、25℃、105℃、130℃、155℃、180℃、220℃の温度雰囲気下で、島津製作所オートグラフ DSS-5000を用いて測定した。その結果を図1に示す。図1から明らかなように、220℃の温度における圧粉磁心の曲げ強さは、室温とはほぼ同じである。

【0084】また、圧粉磁心を155℃の恒温槽中に所定時間保持した後、恒温槽から取り出して、155℃の温度雰囲気下で島津製作所オートグラフ DSS-5000を用いて圧粉磁心の曲げ強さを測定した。その結果を図2に示す。図2から明らかなように、155℃の恒温槽に20000時間保持しても、圧粉磁心の曲げ強さはほとんど低下していない。

【0085】さらに、図3に示す形状の固有抵抗測定試験片(単位:mm)と図4に示す形状の鉄損測定用圧粉磁心(単位:mm)を作製し、製作直後の固有抵抗の温度特性、155℃に所定時間保持したときの155℃における固有抵抗の経時変化、及び15kHz、155℃に所定時間保持したときの155℃における鉄損の経時変化を測定した。結果を、それぞれ図5、6及び7に示した。図5から明らかなように、圧粉磁心の固有抵抗は温度によらずほぼ一定である。また、図6及び図7から明らかなように、155℃の恒温槽に20000時間時間保持しても、圧粉磁心の固有抵抗及び鉄損はほとんど初期と変わらない。

#### 【0086】〔実施例2～51、比較例1～3〕

##### (1) 熱硬化性樹脂組成物B～Eの作製

表1に記載の、硬化触媒を除いたビスマレイミド、ジアリルフェノール類等の化合物を混合し、湯浴中で130℃まで加熱し、完全に溶解させた。130℃で10分間保ち、熱硬化性マレイミド系樹脂組成物を作製した。これに表1に記載の硬化触媒を加えて、熱硬化性樹脂組成物B～Eとした。

#### 【0087】(2) 熱硬化性樹脂組成物F～Iの作製

表1に記載の、硬化触媒を除いたビスマレイミド、アミン類、メチルメチルケトン等の化合物を混合し、湯浴中で60℃まで加熱し、完全に溶解させた。60℃で30分間保ち、熱硬化性マレイミド系樹脂組成物を作製した。これに表1に記載の硬化触媒を加え、メチルエチルケトンを留去して熱硬化性樹脂組成物F～Iとした。

#### 【0088】(3) 熱硬化性樹脂組成物J～Zの作製

表2～表4に記載の化合物を混合、攪拌して熱硬化性樹脂組成物J～Z(J-1、J-2、J-3含む)を作製した。

#### (4) 圧粉磁心の作製

表5～表15記載の金属磁性粉末1kgと絶縁処理液とを混合した。この混合体を、300℃で20分間乾燥させて、絶縁層で被覆した金属磁性粉末を得た。この金属磁性粉末と表1～表4に記載の熱硬化性樹脂組成物とを、重量比97:3の配合比で混合し、圧粉磁心用樹脂組成物を得た。得られた圧粉磁心用樹脂組成物を、表5～表15に記載の圧力条件(100～800MPa)で粉末成型プレスによって所定の形状に固化成型した。次いで、この固化成型体を表5～表15に記載の硬化条件で加熱、硬化して圧粉磁心とした。得られた圧粉磁心の初期及び155℃で5000時間保持後の155℃における曲げ強度、固有抵抗及び鉄損を測定した。測定結果は、表5～表15に記載のとおりである。

#### 【0089】

##### 【表1】

【0090】  
【表2】

熱硬化性樹脂組成物	A	B	C	D	E	F	G	H	I
配合量 (重量部)	BMI 70	DAPPI 70	BMI 70	DAPPI 70	DAPPI 70	BMI 132.5	BMI 70	BMI 132.5	DAPPI 70
	DABF 30	DABF 30	DABF 30	DABA 30	DGEDABA 30	DAM 46.1	DAM 10	DADPE 93.1	DAP 30
	TAIC 67	TAIC 67	1,2-DGON 30	—	—	TGIC 100.0	DGEBPE 20	—	—
	2E4MZ-CN 0.835	TPP-K 0.85	BTTP-K 0.500	TEA-K 0.835	—	—	BTTP-K 0.500	—	—
備 考	硬化触媒を除いた樹脂組成物を130℃ で10分間加熱、プレポリマ化				硬化触媒を除いた樹脂組成物をメチ ルエチルケトンに溶解後、60℃で30 分間加熱、プレポリマ化				

40 【0091】  
【表3】

熱硬化性樹脂組成物	J	K	L	M	N	O	P	Q	R	U
配合量 (重量部)	TKEPPE 137.2	TKEPPE 100.0	TKEPPE 156.8	TKEPPE 98.0	TKEPPE 58.8	TKEPPE 156.8	TKEPPE 137.2	TEPPB 160	TEPPB 160	TEPPM 132.3
	DGEBPA 52.5	—	DGEBPA 52.5	DGEBPA 87.5	DGEBPA 91.9	DGEBPA 52.5	DGEBPA 52.5	1,2-DGON 42.3	DGEBPF 34.0	DGEBPF 34
	MHAC-P 169.1	PN 54.0	MHAC-P 169.1	MHAC-P 169.1	MHAC-P 169.1	—	—	—	—	—
	TPP-K 3.59	TPP-K 1.54	BTTP-K 1.89	IOZ 1.77	CI12-AZINE 1.60	TPP-K 2.09	TPP 2.00	BTTP-K 2.09	2E4MZ-CN 1.94	TEA-K 1.66

熱硬化性樹脂組成物	V	W	X	Y	Z
配合量 (重量部)	1,2-DGON 98.7	1,3-DGON 98.7	PDGON 175	CONDGONM 187	PGENCN 225
	TKEPPE 57.6	TKEPPE 57.6	TKEPPE 57.6	—	—
	MHAC-P 178	PN 106	—	MHAC-P 178	MHAC-P 178
	TPP-K 3.3	TPP-K 2.62	DTPP-K 2.32	TEA-K 3.65	C11Z-AZINE 403

35

(19)

特開平9-102409

36

【0092】

【表4】

10

20

30

熱硬化性樹脂組成物	J	J-1	J-2	J-3
配合量 (重量部)	TKEPPE 137.2	TKEPPE 192.0	TKEPPE 96.0	TKEPPE 48.0
	DGEBPA 52.5		DGEBPA 87.5	DGEBPA 131.25
	MHAC-P 169.1	MHAC-P 169.1	MHAC-P 169.1	MHAC-P 169.1
	TPP-K 3.59	TPP-K 3.59	TPP-K 3.59	TPP-K 3.59

【 0 0 9 3 】

【表 5】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
金属磁性粉末	種類	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉
	平均粒径(μm)	75	75	75	75	75
絶縁処理液 (g)	扁平度	8	8	8	8	8
		磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (1.043) ほう酸 (0.162) MgO (0.167) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (1.930) ほう酸 (0.300) MgO (0.310) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.193) ほう酸 (0.030) MgO (0.031) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.100) KBM603 (0.05) 水 (50.0)
熱硬化性樹脂組成物		A	B	C	D	E
成型圧力 (MPa)		600	600	600	600	600
硬化条件 (°C/h)		150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4
曲げ 強度	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	10.5	10.3	10.5	10.2
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	10.2	10.1	10.1	9.9
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	10.0	9.9	10.0	10.0
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	9.9	9.7	9.9	9.9
固有抵抗 (Ω-cm at 155°C)		初期	2.0	2.0	2.0	2.1
鉄損 (W/kg at 155°C)		155°C, 5000h 保持後	1.7	1.5	1.7	1.6
		初期	20	25	22	26
		15kHz, 0.5T, 155°C, 5000h 保持後	30	35	37	36
						37

41

		実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	比較例1
金属磁性粉末	種類	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉
	平均粒径(μm)	75	75	75	75	75
絶縁処理液 (g)	扁平度	8	8	8	8	8
		燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)
熱硬化性樹脂組成物		F	H	H	H	H
成型圧力 (MPa)		600	600	600	600	600
硬化条件 (°C/h)		150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+220/4	150/1+220/4+270/4	150/1+200/4+300/4	500/1
曲げ強度	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.2	9.2	8.0	4.2
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	8.7	9.0	7.5	3.0
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.0	8.7	5.8	3.2
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	8.9	8.5	5.5	1.8
固有抵抗 (Ω・cm at 155°C)		初期	1.2	1.3	1	1
155°C, 5000h 保持後		0.7	1.1	1.1	0.7	0.01
鉄損 (W/kg at 155°C)	初期	30	25	25	30	50
	15kHz, 0.5T, 155°C, 5000h 保持後	60	50	50	90	1100

42

【0095】

40 【表7】

		種類	実施例10		実施例11		実施例12		実施例13		実施例14	
			アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉		
金属磁性粉末	平均粒径(μm)	75	75	75	75	75	75	75	75	75	75	75
	扁平度	8	8	8	8	8	8	8	8	8	8	8
絶縁処理液 (g)		炭酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)		炭酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)		炭酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)		炭酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)		炭酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)		
熱硬化性樹脂組成物		I		J		K		L		M		
成型圧力 (MPa)		600		600		600		600		600		
硬化条件 (°C/h)		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		
曲げ強度	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)		9.2		9.2		9.2		9.2		
		(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)		9.0		9.0		9.0		9.0		
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)		9.0		9.0		9.0		9.0		
		(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)		8.9		8.9		8.9		8.9		
固有抵抗 (Ω·cm at 155°C)		初期		I		I		I		I		
		155°C, 5000h 保持後		0.7		0.7		0.7		0.7		
鉄損 (W/kg at 155°C)		初期		30		30		30		30		
		15kHz, 0.5T, 155°C, 5000h 保持後		60		60		60		60		



45

46

		実施例15	実施例16	実施例17	実施例18	実施例19
金属磁性粉末	種類	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉
	平均粒径(μm)	75	75	75	75	75
絶縁処理液 (g)		8	8	8	8	8
熱硬化性樹脂組成物		燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)
成型圧力 (MPa)		G	H	I	J	K
硬化条件 (°C/h)		600	600	600	600	600
曲げ強度		150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4
固有抵抗 (Ω-cm at 155°C)	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.2	9.2	9.2	9.2
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	10.5	10.0	9.0	9.0
	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.0	9.0	9.0	9.0
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	9.7	9.0	9.0	9.0
鉄損 (W/kg at 155°C)		8.9	9.3	8.9	8.9	8.9
初期		I	I	I	I	I
155°C, 5000h 保持後		0.7	0.9	0.7	0.7	0.7
初期		30	30	30	30	30
15kHz, 0.5T, 155°C, 5000h 保持後		60	35	60	60	60

		実施例20	実施例21	実施例22	実施例23	実施例24
金属磁性粉末	種類	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉
	平均粒径( $\mu\text{m}$ )	75	75	75	75	75
絶縁処理液 (g)		5	7	10	15	8
絶縁処理液 (g)		硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)
熱硬化性樹脂組成物		G	G	G	G	G
成型圧力 (MPa)		600	600	600	600	100
硬化条件 ( $^{\circ}\text{C}/\text{h}$ )		150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4
曲げ強度	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155 $^{\circ}\text{C}$ )	9.2	9.2	9.2	9.2
	155 $^{\circ}\text{C}$ , 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180 $^{\circ}\text{C}$ )	9.0	9.0	9.0	9.0
	155 $^{\circ}\text{C}$ , 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 155 $^{\circ}\text{C}$ )	9.0	9.0	9.0	9.0
	155 $^{\circ}\text{C}$ , 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180 $^{\circ}\text{C}$ )	8.9	8.9	8.9	8.9
固有抵抗 ( $\Omega\cdot\text{cm}$ at 155 $^{\circ}\text{C}$ )		初期	1	1	1	1
固有抵抗 ( $\Omega\cdot\text{cm}$ at 155 $^{\circ}\text{C}$ )		155 $^{\circ}\text{C}$ , 5000h 保持後	0.7	0.7	0.7	0.7
鉄損 (W/kg at 155 $^{\circ}\text{C}$ )		初期	30	30	30	30
鉄損 (W/kg at 155 $^{\circ}\text{C}$ )		15kHz, 0.5T, 155 $^{\circ}\text{C}$ , 5000h 保持後	60	60	60	60

49

		実施例25	実施例26	実施例27	実施例28	実施例29
金属磁性粉末	種類	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉
	平均粒径(μm)	75	75	75	75	75
絶縁処理液 (D)	扁平度	8	8	8	8	8
		硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)
熱硬化性樹脂組成物		N	O	P	Q	R
成型圧力 (MPa)		100	300	500	800	1000
硬化条件 (°C/h)		150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4
曲げ 強度	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.3	9.3	9.2	9.2
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	9.2	9.0	9.0	9.0
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.0	9.0	9.0	9.0
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	8.9	8.9	8.9	8.9
固有抵抗 (Ω·cm at 155°C)	初期	1	1	1	1	1
	155°C, 5000h 保持後	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7
鉄損 (W/kg at 155°C)	初期	30	30	30	30	30
	15kHz, 0.5T, 155°C, 5000h 保持後	60	60	60	60	60

50

		実施例30	実施例31	実施例32	実施例33	実施例34
金属磁性粉末	種類	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉
	平均粒径 (μm)	60	40	30	90	120
扁平度		8	8	8	8	8
絶縁処理液 (g)		磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)
熱硬化性樹脂組成物		U	V	W	X	Y
成型圧力 (MPa)		600	600	600	600	600
硬化条件 (°C / h)		150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4
曲 げ 強 度	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.2	9.2	9.2	9.2
		(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	9.0	9.0	9.0	9.0
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.0	9.0	9.0	9.0
		(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	8.9	8.9	8.9	8.9
固有抵抗 (Ω-cm at 155°C)		初期	1	1	1	1
		155°C, 5000h 保持後	0.7	0.7	0.7	0.7
鉄 損 (W/kg at 155°C)		初期	30	30	30	30
		15kHz, 0.5T, 155°C, 5000h 保持後	60	60	60	60

53

金属磁性粉末	種類	実施例35		実施例36		実施例37		実施例38		実施例39	
		アトマイズ鉄粉		アトマイズ鉄粉		アトマイズ鉄粉		アトマイズ鉄粉		アトマイズ鉄粉	
絶縁処理液 (g)	平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	75		75		75		75		75	
	扁平度	球状		8		8		8		8	
熱硬化性樹脂組成物	絶縁処理液 (g)	硝酸 (0.386) ほう酸 (0.060) $\text{MgO}$ (0.062) $\text{KBM603}$ (0.05) 水 (50.0)		硝酸亜鉛 (2.00) $\text{KBM603}$ (0.05) 水 (50.0)		硝酸 (2.00) $\text{MgO}$ (0.062) $\text{KBM603}$ (0.05) 水 (50.0)		硝酸 (4.00) $\text{KBM603}$ (0.05) 水 (50.0)		硝酸亜鉛 (2.00) $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ (0.062) $\text{KBM603}$ (0.05) 水 (50.0)	
	成型圧力 (MPa)	Z		G		G		G		G	
硬化条件 (°C/h)	成型圧力 (MPa)	600		600		600		600		600	
	硬化条件 (°C/h)	150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4	
固有抵抗 (Ω·cm at 155°C)	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)		9.2		9.2		9.2		9.2	
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)		9.0		9.0		9.0		9.0	
鉄損 (W/kg at 155°C)	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)		9.0		9.0		9.0		9.0	
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)		8.9		8.9		8.9		8.9	
固有抵抗 (Ω·cm at 155°C)	初期	1		3.1		3.2		3.1		3.1	
	155°C, 5000h 保持後	0.7		0.15		0.08		0.09		0.2	
鉄損 (W/kg at 155°C)	初期	30		30		30		30		30	
	155°C, 5000h 保持後	60		160		450		360		160	

54

55

金属磁性粉末	種類	比較例2		比較例3		実施例40		実施例41		実施例42	
		アトマイズ鉄粉		アトマイズ鉄粉		アトマイズ鉄粉		アトマイズ鉄粉		アトマイズ鉄粉	
		平均粒径(μm)	扁平度	75	8	75	8	75	8	75	8
絶縁処理液 (g)		S-181 ( 10.0)		IPZ(10.0)		磷酸 (2.00) MgO (0.062) KBM603( 0.05) 水 (30.0)		磷酸 (2.00) MgO (0.062) KBM603( 0.05) 水 (50.0)		磷酸 (2.00) MgO (0.062) KBM603( 0.05) 水 (50.0)	
熱硬化性樹脂組成物		G		G		J-1		J-2		J-3	
成型圧力 (MPa)		600		600		600		600		600	
硬化条件 ( °C / h )		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4		150/1+200/4+250/4	
曲げ強度	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)		9.2		9.2		9.2		9.2	
		(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)		9.0		9.0		9.0		9.0	
	155°C, 5000h 保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)		9.0		9.0		9.0		9.0	
		(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)		8.9		8.9		8.9		8.9	
固有抵抗 (Ω・cm at 155°C)		初期		8		1		1		1	
		155°C, 5000h 保持後		0.04		0.07		0.7		0.1	
鉄 損 (W/kg at 155°C)	初期	15		30		30		30		30	
		15kHz, 0.5T, 155°C, 5000h 保持後		800		700		60		360	

56

57

実施例43		実施例44		実施例45		実施例46		実施例47	
金属磁性粉末	種類	Fe-1%Al合金	Fe-1%Al合金	電解鉄粉	電解鉄粉	Fe-Si-Al合金粉	Fe-Si-Al合金粉	アトマイズ鉄粉+Fe-3%Si合金	アトマイズ鉄粉+Fe-3%Si合金
	平均粒径(μm)								
扁平度		75	75	75	75	75	75	75	75
絶縁処理液 (g)		8	8	8	8	8	8	8	8
熱硬化性樹脂組成物		磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	磷酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)
成型圧力 (MPa)		G	G	G	G	G	G	G	G
硬化条件 (°C/h)		600	600	600	600	600	600	600	600
曲げ強度		150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4
固有抵抗 (Ω-cm at 155°C)	初期	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.2	9.2	9.2	9.2	9.2	9.2	9.2
	155°C, 5000h	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0
	保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 155°C)	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0
	保持後	(kg/mm <sup>2</sup> at 180°C)	8.9	8.9	8.9	8.9	8.9	8.9	8.9
鉄損 (W/kg at 155°C)	初期	初期	1	1	1	1	1	1	1
	155°C, 5000h	155°C, 5000h	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7
	保持後	保持後	30	30	30	30	30	30	30
	保持後	保持後	60	60	60	60	60	60	60

58

実施例1	実施例48	実施例49	実施例50	実施例51
種類	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉	アトマイズ鉄粉
平均粒径( $\mu\text{m}$ )	75	75	75	75
扁平度	8	8	8	8
絶縁処理液 (g)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)	燐酸 (0.386) ほう酸 (0.060) MgO (0.062) KBM603 (0.05) 水 (50.0)
熱硬化性樹脂組成物	A	A	A	A
熱硬化性樹脂組成物量 (重量%)	3.0	2.6	2.3	2.0
成型圧力 (MPa)	600	600	600	600
硬化条件 ( $^{\circ}\text{C}/\text{h}$ )	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4	150/1+200/4+250/4
曲げ 強 度	初期 ( $\text{kg}/\text{mm}^2$ at $155^{\circ}\text{C}$ )	10.5	10.5	10.5
	155 $^{\circ}\text{C}$ 5000h 保持後	10.2	10.2	10.2
	155 $^{\circ}\text{C}$ 5000h 保持後	10.0	10.0	10.0
	155 $^{\circ}\text{C}$ 5000h 保持後	9.9	9.9	9.9
固有抵抗 ( $\Omega\text{-cm}$ at $155^{\circ}\text{C}$ )	初期	2.0	1.8	1.4
	155 $^{\circ}\text{C}$ , 5000h 保持後	1.7	1.6	1.2
鉄損 ( $\text{W}/\text{kg}$ at $155^{\circ}\text{C}$ )	初期	20	23	25
	15kHz, 0.5T, 155 $^{\circ}\text{C}$ , 5000h 保持後	30	32	39

【0104】実施例1～5（表5に記載）から、耐熱性を有する無機被膜で金属磁性粉末を絶縁した後、ビスマレイミドとジアリルフェノールとを含有するF種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100～800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心は、155℃で5000時間保持した後も優れた機械特性、電気特性及び磁気特性を有していることが分かる。

【0105】実施例6～9及び比較例1（表6に記載）から、耐熱性を有する無機被膜で金属磁性粉末を絶縁し

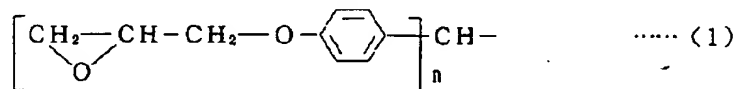
た後、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100～800MPaの圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心は、155℃で5000時間保持した後も優れた機械特性、電気特性、磁気特性を有しているが、加熱硬化温度が500℃になると、機械特性や熱劣化後の電気特性及び磁気特性が低下することが分かる。

【0106】実施例6～17から、耐熱性を有する無機被膜で金属磁性粉末を絶縁した後、ビスマレイミドとジアミン類とを含有する、即ち、アミノマレイミド類を主



61

体とする F 種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより 100~800 MPa の圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心は、155℃で 5000 時間保持した後も優れた機械特性、電気特性及\*



式中、n は 3 以上の整数である。

【0108】で表される多官能エポキシ樹脂を少なくとも含む、F 種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより 100~800 MPa の圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心は、155℃で 5000 時間保持した後も優れた機械特性、電気特性及※

\* び磁気特性を有していることが分かる。実施例 18~30 から、耐熱性を有する無機被膜で金属磁性粉末を絶縁した後、下記一般式(1)

【0107】

【化21】

※ び磁気特性を有していることが分かる。実施例 31~35 から、耐熱性を有する無機被膜で金属磁性粉末を絶縁した後、下記一般式(2)、(3)又は(4)

【0109】

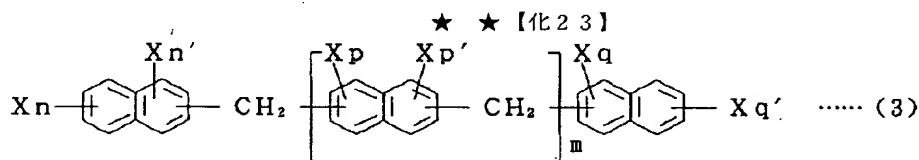
【化22】



式中、X は  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\text{CH}}-\text{CH}_2-$  基 (2, 3-エポキシプロポキシ基) を示す。

n, m は 1, 2 又は 3 である。

【0110】



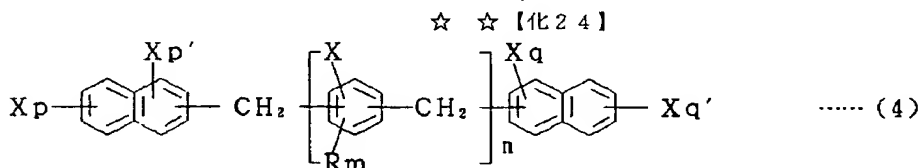
式中、X は  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\text{CH}}-\text{CH}_2-$  基 (2, 3-エポキシプロポキシ基) を示す。

n, n', p, p', q, q' は 0, 1, 2, 3 又は 4 である。

但し、n 及び n', p 及び p', q 及び q' の両者が 0 になることはない。

n は 0, 1 又は 2 である。

【0111】



式中、X は  $-\text{O}-\text{CH}_2-\underset{\text{O}}{\text{CH}}-\text{CH}_2-$  基 (2, 3-エポキシプロポキシ基) を示す。

R は炭素数 1~10 のアルキル基を示す。m は 0, 1 又は 2 であり、n は 1, 2 又は 3 である。

p, p', q, q' は 0, 1, 2, 3 又は 4 である。

但し、p 及び p', q 及び q' の両者が 0 になることはない。

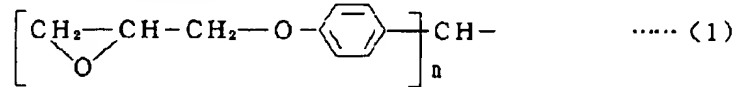
【0112】で表されるナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂を少なくとも含む、F 種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスによ

り 100~800 MPa の圧力で加圧成型するとともに、300℃以下の温度で加熱硬化して得られる圧粉磁心は、155℃で 5000 時間保持した後も優れた機

械特性、電気特性及び磁気特性を有していることが分かる。

【0113】実施例36～39から、耐熱性を有する無機絶縁被膜として磷酸亜鉛系や磷酸系のものを使用した場合、磷酸、酸化マグネシウム及び硼酸を含む混合液で処理して、P、Mg、B及びFeを必須成分とするガラス状絶縁皮膜を形成した場合に比べて、得られる圧粉磁心の特性が低いことが分かる。

【0114】比較例2及び3から、無機絶縁被膜として\*



式中、nは3以上の整数である。

【0116】で表される多官能エポキシ樹脂と、(b) p-(2,3-エポキシプロポキシ)フェニル基を2個有する二官能性エポキシ樹脂との配合割合 (b)/(a) が重量比で1を超えると、155℃で5000時間保持した後の圧粉磁心の機械特性、電気特性及び磁気特性が低下する傾向にあることが分かる。

【0117】実施例43～47から、Fe-Si合金粉、Fe-Al合金粉、Fe-Si-Al合金粉又はそれらとアトマイズ鉄粉とを混合した金属磁性粉末も有用であることが分かる。実施例1及び48～51(表15に記載)から、無機絶縁処理した金属磁性粉末と、F種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物との配合比は、重量比で2.0～3.0が最適であることが分かる。

【0118】〔実施例52〕 回転機固定子及び回転機

の作製  
図8に示すように、実施例1で作製した圧粉磁心を鉄心コア1とし、鉄心コア1の複数のスロット3内に収納される複数のコイル2と、この複数のコイル2と電気的に接続するための口出線4とを備えた回転機固定子を作製した。この固定子では、鉄心コアは、無機絶縁処理した金属磁性粉末とF種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物とを型に流し込み、粉末成型プレスで100～800MPaの圧力で加圧成型し、300℃以下の温度で加熱硬化して得られるため、珪素鋼板を打ち抜いて鉄心コアを作製する方法と比較して材料の無駄が少なく、経済上からも、産業廃棄物を減らす上からも好都合である。また、この固定子と回転子とを組み合わせ、図9に示すように回転機を製作した。この回転機は、固定子の鉄心コアの耐熱性が高いため、焼付き等の心配がない。

【0119】〔実施例53〕 変圧器の作製

図10に示すように、実施例1で作製した圧粉磁心を鉄心コア1とし、一次コイル7及び二次コイル6と組み合わせ、変圧器を製造した。この変圧器では、鉄心コア

\*チタン系界面活性剤やジルコニウム系界面活性剤を使用した場合、155℃で5000時間保持した後の圧粉磁心の電気特性及び磁気特性が、初期に比べて大幅に低下していることが分かる。実施例40～42から、(a) p-(2,3-エポキシプロポキシ)フェニル基を3個以上含む、下記一般式(1)

【0115】

【化25】

は、無機絶縁処理した金属磁性粉末とF種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物とを型に流し込み、粉末成型プレスで100～800MPaの圧力で加圧成型し、300℃以下の温度で加熱硬化して得られるため、珪素鋼板を打ち抜いて鉄心コアを作製する方法と比較して材料の無駄が少なく、経済上からも、産業廃棄物を減らす上からも好都合である。また、この変圧器は耐熱性の高い鉄心コアを用いるため、焼付き等の心配がない。

【0120】〔実施例54〕 リアクトルの作製-1  
図11に示すように、実施例1で作製した圧粉磁心を鉄心コア1とし、熱伝導率が2～4W/Kmのモールドでコイルをモールドしたレジンモールドコイル8を用いてリアクトルを作製した。従来の圧粉磁心をコアとした鉄心及びモールドコイルからなるリアクトルは、運転中に鉄心コアの温度が上昇しないように冷却ファンを取付け、更に直接水冷する必要があったが、本リアクトルは耐熱性に優れた鉄心コアを使用しているため、水冷等する必要がない。

【0121】〔実施例55〕 リアクトルの作製-2  
図12に示すように、実施例1で作製した圧粉磁心を鉄心コア1とし、熱伝導率が2～4W/Kmのモールドでコイルをモールドしたモールドコイル8を用いるとともに、熱放散性を向上させるために、鉄心コア1とモールドコイル8との間に熱伝導率が0.2～4W/Kmの絶縁物を充填したリアクトルを作製した。従来の圧粉磁心をコアとした鉄心及びモールドコイルからなるリアクトルは、運転中に鉄心コアの温度が上昇しないように冷却ファンを取付け、更に直接水冷する必要があったが、本リアクトルは耐熱性に優れた鉄心コアを使用しているため、水冷等する必要がない。このリアクトルは、250Aで150μH以上のインダクタンスを有し、その値は10kHz～400kHzにおいてはほとんど変化しなかった。

【0122】

【発明の効果】本発明によれば、耐熱性を有する無機絶

縁層で被覆した金属磁性粉末にF種以上の耐熱性を有する熱硬化性樹脂組成物を添加、混合し、粉末成型プレスにより100～800MPaで加圧成型するとともに、300℃以下で加熱硬化して圧粉磁心を作製しているため、155℃に5000時間保持した後でも、圧粉磁心は金属磁性粉末粒子相互の絶縁を維持でき、0.1～10Ωcmの固有抵抗を示し、金属磁性粉末同志の接触による渦電流損の増大を抑制できる。この圧粉磁心を鉄心としたリアクトルは、水冷等の冷却を施さなくても使用できるという利点があり、また、圧粉磁心を珪素銅板の代りに使うと、打ち抜き等をする必要がないため、材料が無駄にならないという利点がある。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の圧粉磁心の曲げ強度の温度依存性を示すグラフである。

【図2】本発明の圧粉磁心を155℃の温度に所定時間保持したときの155℃における曲げ強度の経時変化を示すグラフである。

【図3】固有抵抗測定用試験片の形状を示す図である。

【図4】鉄損測定用試験片の形状を示す図である。

【図5】本発明の圧粉磁心の固有抵抗の温度依存性を示すグラフである。

【図6】本発明の圧粉磁心を155℃の温度に所定時間保持したときの155℃における固有抵抗の経時変化を示すグラフである。

【図7】本発明の圧粉磁心を15kHz、155℃に所定時間保持したときの155℃における鉄損の経時変化を示すグラフである。

【図8】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとした回転機固定子の一例を示す図である。

【図9】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとした固定子を用いた回転機の一例を示す図である。

【図10】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとした変圧器の一例を示す図である。

【図11】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトルの一例を示す図である。

【図12】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトルの他の例を示す図である。

【図13】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトルを用いた半導体スイッチの回路構成の一例を示す図で\*40

\*ある。

【図14】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトルを用いた半導体スイッチの実装構成の一例を示す図である。

【図15】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトルを用いた半導体スイッチの冷却方式の一例を示す図である。

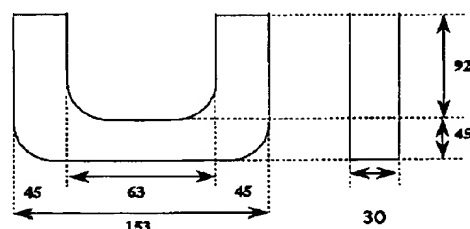
【図16】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトルを使用した半導体スイッチを用いた直流送電バルブの一例を示す図である。

【図17】本発明の圧粉磁心を鉄心コアとしたリアクトルを使用した半導体スイッチを用いた電力変換装置の一例を示す図である。

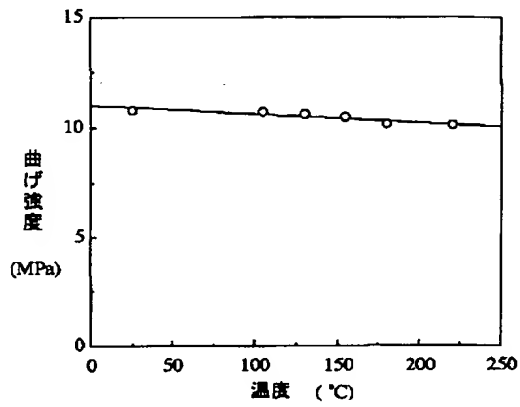
【符号の説明】

- 1：鉄心コア
- 2：コイル
- 3：スロット
- 4：口出線
- 5：回転子
- 6：二次コイル
- 7：一次コイル
- 8：レジンモールドコイル
- 9：高熱伝導性充填物
- 101、102、103、・・・、10n：サイリスタ素子
- 11、12：リアクトル
- 131、132、133、・・・、13n：抵抗器
- 141、142、143、・・・、14n：コンデンサ
- 151、152、153、154、155、156、157：冷却フィン
- 161、162、163、・・・、16n：半導体スイッチ
- 17：水パイプ
- 18：絶縁柱
- 19：電力変換装置
- 20：交流系統
- 21：直流系統
- 221、222、223、224、225、226：バルブ

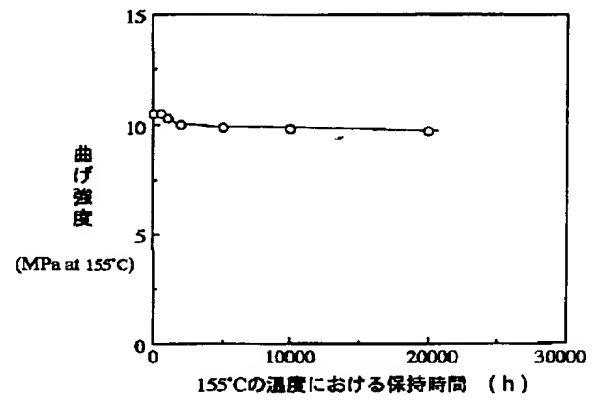
【図4】



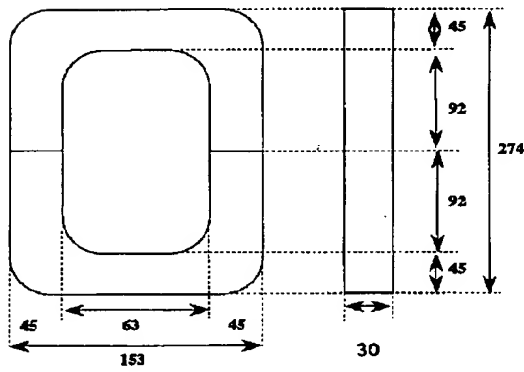
【図1】



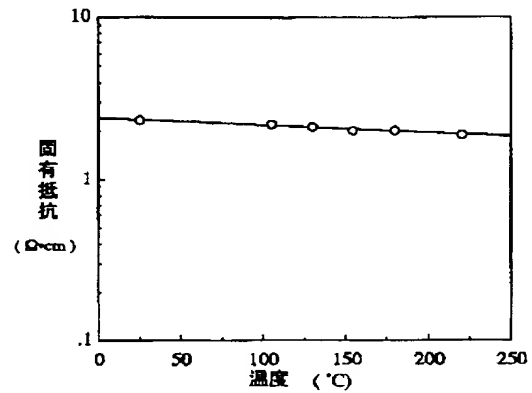
【図2】



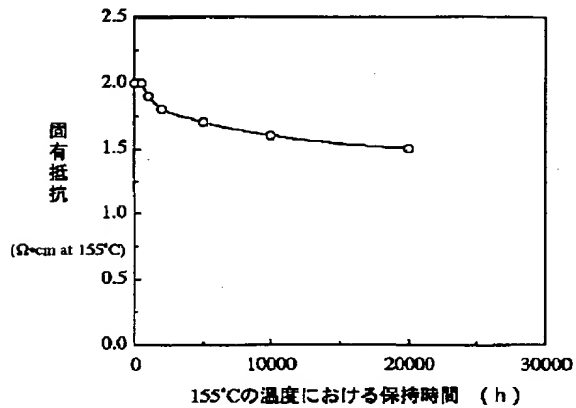
【図3】



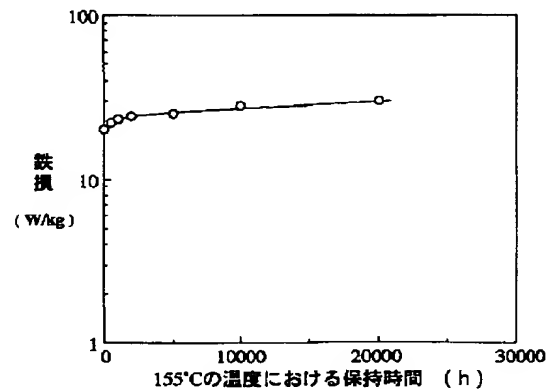
【図5】



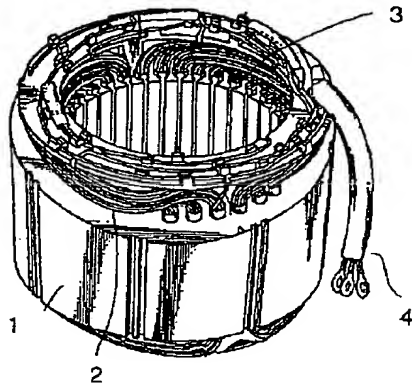
【図6】



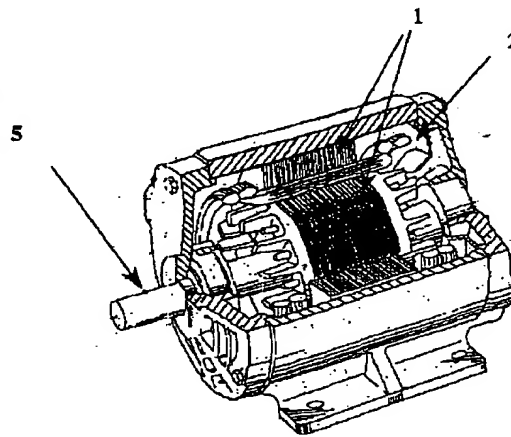
【図7】



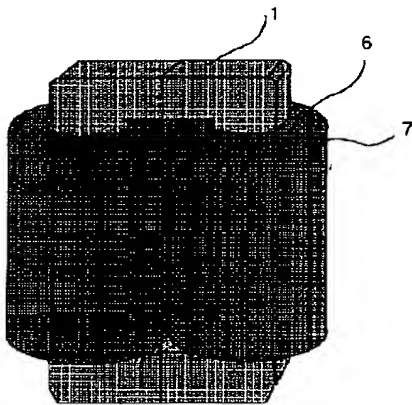
【図 8】



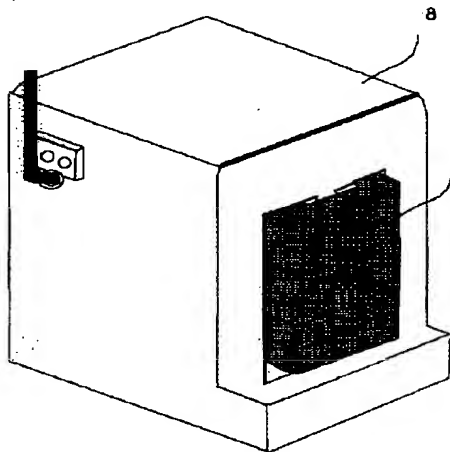
【図 9】



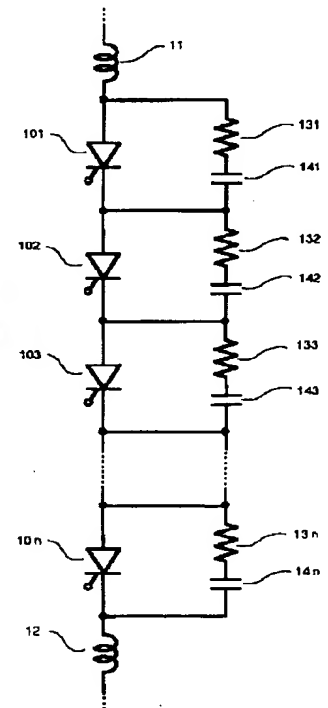
【図 10】



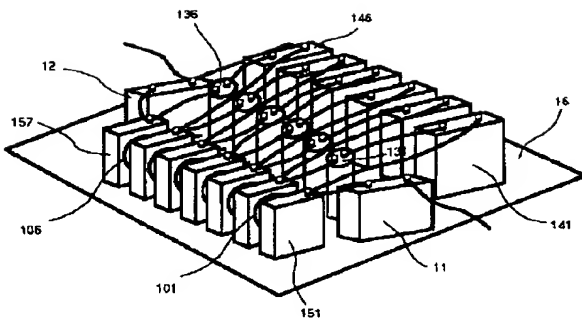
【図 11】



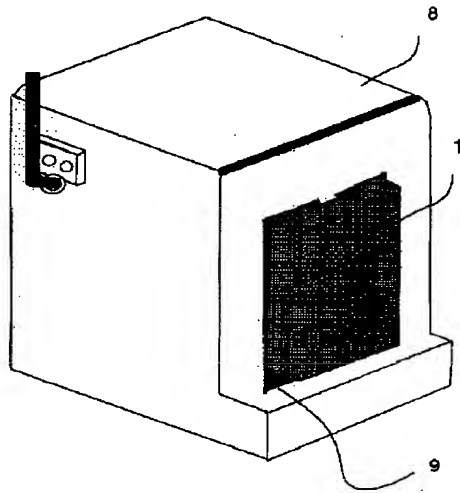
【図 13】



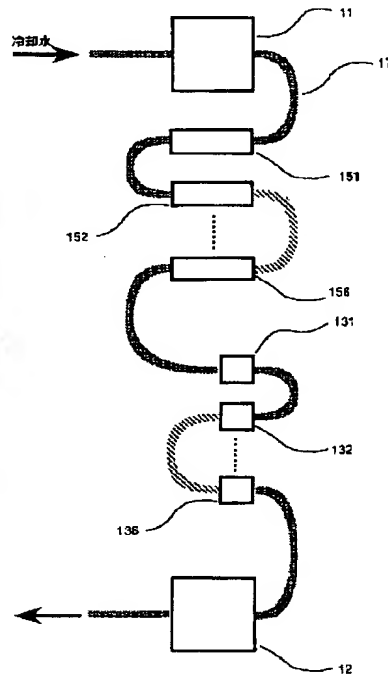
【図 14】



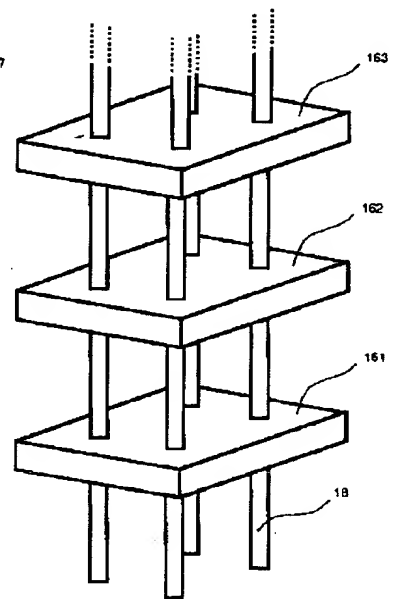
【図12】



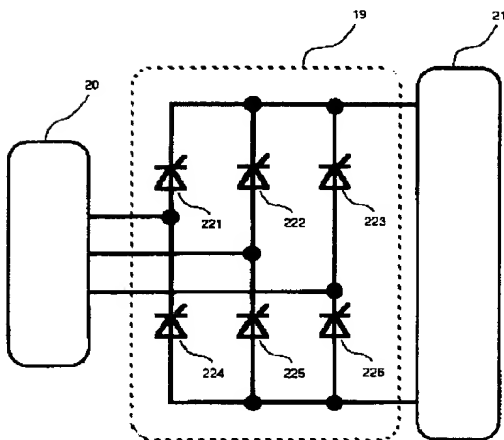
【図15】



【図16】



【図17】



フロントページの続き

(72)発明者 後藤 和夫  
茨城県日立市幸町三丁目1番1号 株式会  
社日立製作所日立工場内

(72)発明者 田中 主税  
茨城県日立市幸町三丁目1番1号 株式会  
社日立製作所日立工場内

(72)発明者 浅香 一夫  
千葉県松戸市稗台520番地 日立粉末冶金  
株式会社内

(72)発明者 宮尾 博  
茨城県日立市大みか町七丁目2番1号 株  
式会社日立製作所電力・電機開発本部内